

中性子散乱による半磁性半導体中の光励起磁性クラスターの研究

著者	梶谷 剛
URL	http://hdl.handle.net/10097/41423

中性子散乱による半磁性半導体中の 光励起磁性クラスターの研究

(課題番号：07455417)

平成7年度～平成9年度科学研究補助金（~~基礎~~研究(B)(2)) 研究成果報告書

平成10年3月

研究代表者： 梶谷 剛
(東北大学大学院工学研究科、応用物理学専攻)

は し が き

標題の研究は平成7年度から9年度までの間に実施したもので、科学研究補助金「一般研究(B)(2)」の補助を得て実施したものである。以下に研究の組織等と公表した研究成果のリストを示す。

記

研究組織

研究代表者：梶谷 剛 (東北大学大学院工学研究科)

研究分担者：伊藤 正 (東北大学大学院工学研究科)

社本真一 (東北大学大学院工学研究科)

小野泰弘 (東北大学大学院工学研究科)

宮崎 譲 (東北大学大学院工学研究科)

研究経費

平成7年度	5、000千円
平成8年度	1、100千円
平成9年度	500千円
計	6、600千円

研究発表

(1) 学会誌等

1.Y.Ono,K.Takayama and T.Kajitani:

"X-ray Diffraction Study of LaBSiO₅",

Journal of the Physical Society of Japan 65 (1996) 10月1日.

2.B.P.Zang,T.Yasuda,Y.Segawa,H.Yaguchi,K.Onabe,E.Edamatsu and T.Itoh:

"Naturally formed ZnCdSe quantum dots on ZnSe(110) surfaces"

Applied Physics Letters 70 (1997) 5月5日.

3.B.P.Zang,T.Yasuda,Y.Segawa,K.Edamatsu and T.Itoh:

"Spontaneous formation and photoluminescence of ZnSe dot arrays"

Applied Physics Letters 71 (1997) 12月8日.

4.T.Kajitani,Y.Tsubakino,H.Okamoto,N.Kuroda and H.Yamashita:

"Cold neutron scattering study on quasi-1D metal complexes"

Activity Report on Neutron Scattering Research ,Vol.2 (1995) ,ISSP Univ. Tokyo, 10月.

5.K.Takayama,M.Yamashita and T.Kajitani:

"Inelastic Neutron Scattering Study of the Haldane-gap System Ni(C₅H₁₄N₂)₂N₃ClO₃"

Activity Report on Neutron Scattering Research ,Vol.3 (1996) ,ISSP Univ. Tokyo, 10月.

6.Y.Ono,K.Sato,S.Shamoto,T.Sato,Y.Oka and T.Kajitani:

"Single Crystal Neutron Diffraction Study of Diluted Magnetic Semiconductor

Zn_{1-x}Mn_xTe with x=0.432"

Activity Report on Neutron Scattering Research ,Vol.4 (1997) ,ISSP Univ. Tokyo, 10月.

7. Y. Ono, K. Sato, S. Shamoto, T. Sato, Y. Oka and T. Kajitani:
 "Cold Neutron Scattering Study of Diluted Magnetic Semiconductor $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ with $x=0.432$ "
 Activity Report on Neutron Scattering Research, Vol.4 (1997), ISSP Univ. Tokyo, 10月.
8. T. Kajitani, Y. Ono, Y. Miyazaki, T. Sasaki and N. Toyota:
 "Cold Neutron Scattering Study on BEDT-TTF Salts"
 Activity Report on Neutron Scattering Research, Vol.4 (1997), ISSP Univ. Tokyo, 10月.
9. Y. Ono, J. Shiomi, H. Kato, T. Iriyama and T. Kajitani:
 "X-ray diffraction study of $\text{Sm}_2(\text{Fe}_{1-x}\text{Al}_x)_{17}$ single crystals with $x=0.058, 0.081$ "
 Journal of Magnetism and Magnetic Materials, (accepted on Feb. 9, '98)

(2) 口頭発表

1. 小野泰弘、高山一也、梶谷 剛:
 "LaBSiO₅の構造相転移"、日本物理学会、平成7年9月30日.
2. 梶谷 剛、小野泰弘、椿野幸博、岡本博、黒田規敬、山下正廣:
 "擬一次元金属錯体の構造解析と冷中性子散乱"、
 中性子シンポジウム、平成7年12月12日.
3. 高山一也、小野泰弘、梶谷 剛:
 "LaBSiO₅の構造相転移"、応用物理学会東北支部、平成7年12月20日.
4. 高山一也、小野泰弘、山下正廣、梶谷 剛:
 "ハルデン磁性体NDMAZのX線と中性子線による研究"、
 応用物理学会東北支部、平成8年12月13日.
5. 佐藤 圭、佐藤敏雄、岡泰夫、下条 豊、森井幸生、大山研司、山口泰男、
 小野泰弘、宮崎 譲、社本真一、梶谷 剛:
 "半磁性半導体 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の中性子散乱"、
 応用物理学会東北支部、平成8年12月13日.
6. 石田 学、三木寛之、山口泰男、小野泰弘、梶谷 剛:
 " $\text{Fe}_{1.6}\text{Mn}_{1.4}\text{Si}$ の強磁性スピン波の冷中性子分光"
 日本物理学会、平成9年3月29日.
7. 小野泰弘、原田継介、梶谷 剛:"マキシマムエントロピー法を用いた
 $(\text{NH}_4)_2\text{BeF}_4$ の精密電子密度分布解析"、日本物理学会、平成9年10月5日.
8. 社本真一、加藤達哉、宮崎 譲、大山研司、大橋正義、山口泰男、梶谷 剛:
 "CaNiNの低温粉末中性子散乱"、日本物理学会、平成9年10月7日.

9. 社本真一、加藤達哉、宮崎 譲、大山研司、大橋正義、山口泰男、梶谷 剛：
”CaNiNの低温粉末中性子散乱”、
中性子シンポジウム、平成9年12月9日。

10. 神谷 毅、佐々木敏雄、岡 泰夫、森井幸生、大山研司、山口泰男、小野泰弘、
社本真一、梶谷 剛：
”半磁性半導体 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の磁性クラスター”、
中性子シンポジウム、平成9年12月9日。

11. 神谷 毅、佐々木敏雄、岡 泰夫、森井幸生、大山研司、山口泰男、小野泰弘、
社本真一、梶谷 剛：
”半磁性半導体 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の磁性クラスター”、
応用物理学会東北支部、平成9年12月12日。

領域で、 Mn 原子周りに短距離磁気秩序が現れていることによる。この短距離磁気秩序が現れる波数領域を特定するために単結晶中性子回折測定を行った。測定は零磁場と5 TeOeの磁場中で行った。測定の結果この短距離磁気秩序が $1/2$ 点(W点)近傍に現れる事が分かった。この逆格子点は $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の結晶におけるtype III型の反強磁性磁気秩序に特有のものであり、この結晶の短距離磁気秩序もtype-III型のものであることを示している。この結果は岡田ら²⁾の $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ について得られている知見と共通している。

本補助金により、光励起電子について知見を得たいと考えてBrillouin散乱装置を整備した。従来の3パス式ファブリークーペロー干渉分光計を改造して測定精度を上げるために5パス式とし、Arレーザーも新規購入した。この装置の性能を確認する目的から、400Kの磁場中で $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{S}$ の測定を行った。測定の結果、中性子散乱測定の結果と一致する結果が得られた。また $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の短距離磁気秩序を直接測定するに至っていないが、Brillouin散乱測定装置を冷中性子散乱装置と平行して利用することが可能になった。

中性子非弾性散乱実験を上記 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の試料について行い、逆格子点 $1/2$ 点近傍にspin glass転移に伴う臨界散乱現象を発見した。臨界散乱は中性子の弾性的散乱として観測されているが、これは臨界点のすぐ上での現象であり、spin glass転移温度付近では観測されているが、性質が異なる。このような現象は金属合金のspin glass転移温度付近では観測されているが、性質が異なる。この現象は本研究が初めてである。

この系において4885, 5145 および6328 Åの波長を持ったレーザー光を入射して室温から20Kまでの電気抵抗率の光照射効果を研究した。その結果、この試料に光電効果があり、特に $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ ($x=0.43$)では150K以下の領域で顕著である事を見出し

目 次

	頁
1. 研究の概要	1
2. 序論	3
3. 研究の目的	12
4. 試料調製	13
5. 実験結果	13
5.1 粉末回折測定	13
5.2 帯磁率測定	16
5.3 単結晶中性子回折測定	20
5.4 冷中性子散乱測定	26
5.5 光伝導測定	35
5.6 Brillouin散乱測定	40
6. 結論	45
7. 参考文献	47
8. 本研究に関連して実施した研究	
8.1 擬一次元金属錯体に関する研究	49
8.2 LaBSiO_5 の相転移に関する研究	52
8.3 ハルデン磁性体NDMAZのハルデンギャップ測定	58
8.4 CaNiN の合成と磁性に関する研究	63
8.5 $\text{ZnSe}(110)$ 面上の ZnCdSe 量子ドットに関する研究	66
8.6 ZnSe ドットアレーの生成と蛍光特性に関する研究	70
8.7 強磁性体 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ のFeのAl置換に関する研究	74

1. 研究の概要

本研究はII-VI族化合物半導体に磁性イオンを添加して磁性と光物性とはどのような結合しているのかを主として中性子回折並びに散乱測定によって研究しようとしたものである。本研究には $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ ($x=0.3 - 0.6$)を典型物質に選び、各種の測定を行った。この系は室温では常磁性状態だが低温領域でスピングラス相に転移することが知られている。実施した実験は、粉末X線回折、粉末中性子回折、SQUIDを用いた帯磁率測定、単結晶中性子回折、冷中性子散乱測定、光伝導測定である。本研究に用いた $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料は東北大学科学計測研究所の岡教授の研究室から提供された。まず、結晶試料の格子定数と磁化率を測定して試料の化学組成とスピングラス転移温度を決めた。さらに、粉末中性子回折測定を行った所、スピングラス転移温度以上の温度領域にもかなり強い磁気散漫散乱強度が現れた。これは、この領域で、Mn原子同士に短範囲磁気秩序が現れていることによる。この散漫散乱強度が現れる波数領域を特定するために単結晶中性子回折測定を行った。測定は零磁場と5 Teslaの磁場中で行った。測定の結果この散漫散乱強度は逆格子の $1 \ 1/2 \ 0$ 点(W点)近傍に現れる事が分かった。この逆格子点はブラベクルラスFの結晶におけるtype-III型の反強磁性磁気秩序に特有のものであり、この結晶の短範囲磁気秩序もtype-IIIが主なものであることを示している。この結果は同型結晶である $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ について得られている知見と共通している。

本補助金により、光励起量子について知見を得たいと考えてBrillouin散乱装置を整備した。在来の3パス式ファブリー=ペロー干渉分光計を改造して測定精度を上げるために5パス式とし、Arレーザーも新規購入した。この装置の性能を確認する目的から、4000Oeの磁場中で $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 系の単結晶を用いた強磁性マグノンの測定を行った。測定の結果、中性子散乱測定の結果と符合するマグノンブランチの一部を観測することができた。未だ $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の磁気励起を直接測定するに至っていないが、Brillouin散乱測定装置を冷中性子散乱装置と平行して利用することが可能になった。

中性子非弾性散乱実験を上記 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料について行い、逆格子点 $1 \ 1/2 \ 0$ 点近傍にspin glass転移に伴う臨界散乱現象を発見した。臨界散乱は中性子の準弾性散乱として観測されているが、これはMn原子の持つ磁気モーメントの自己相関関数に時間発展があり、spin glass 転移温度付近ではフラストレートしている複数種類の磁気相関に動的要素があることに対応している。このような現象は金属合金のspin glass転移温度付近では観測されているが、化合物半導体についての観測は本研究が初めてである。

この系において4885, 5145 および 6328 Åの波長を持ったレーザー光を入射して室温から20Kまでの電気抵抗率の光照射効果を研究した。その結果、この試料に光電効果があり、特に $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ ($x=0.43$)では150K以下の領域で顕著である事を発見し

た。この効果は光照射を止めると熱的な緩和過程を経て元の状態に戻って消えるが、50Kでは光照射後2000秒もの長時間消失しなかった。これはすでに他のII-VI族化合物半導体などで見出されている persistent photoconductivity であると思われる。この系でも本研究により persistent photoconductivity が始めて発見されたのである。上記の光電効果の著しくなる温度、150Kは persistent photoconductivity の研究者の間では quenching temperature と呼ばれている。

現在もこの研究を継続しているところであるが、この他にも、磁性と光物性に関する研究を行っている。

尚、この研究の主な部分は次の諸君の修士研修の一部として行ったものである。

東北大学大学院工学研究科 応用物理学専攻 博士課程前期2年の課程

氏名	研修題目	卒業年月
椿野幸博	”電荷揺動錯体の結晶構造とダイナミクス”	平成7年3月修了
佐藤 圭	”希薄磁性半導体 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の磁気クラスター”	平成9年3月修了
高山一也	”低次元金属錯体の磁性と結晶構造”	平成9年3月修了
石田 学	”光散乱および冷中性子散乱による $(\text{Fe,Mn})_3\text{Si}$ の研究”	平成9年3月修了

謝辞

この研究の遂行に関して、沢山の $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 単結晶のご提供を戴いた、東北大学科学計測研究所・岡 泰夫教授に深く感謝致します。また、直接結晶の調製に当たられた同研究所技官・佐藤敏雄さんにも感謝致します。FeMnSi系の磁気散乱等で試料提供や研究の相談に快く応じて戴いた東北大学金属材料研究所・山口泰男教授および三木寛之研究員に感謝します。磁気励起に関する Brillouin 散乱測定では石巻専修大学・吉原 章教授にご指導戴き、深く感謝します。中性子回折実験には日本原子力研究所の回折装置 HRPD を利用させて戴き、管理責任者の森井幸生グループリーダーに感謝します。

2. 序論

半磁性半導体 (Semimagnetic semiconductor; SMSC)はII-VI族やIII-V族化合物半導体の金属イオンを遷移金属イオンないし希土類金属イオン等の強磁性金属イオンと部分置換して半導体としての物性と磁性的性質とを共存させた新しい半導体としての利用が考えられている。特に、II-VI族化合物半導体はエネルギーギャップが2eVを超えるものが多く、III-V族化合物半導体の倍程度であり、波長可変レーザー等光エレクトロニクス分野の利用が図られている。半磁性半導体中の金属イオンの磁性金属イオン置換量が少ない場合は希薄磁性半導体 (diluted magnetic semiconductor)と呼ばれているが、本研究は置換量の多い試料の測定を行っている。

II-VI族化合物半導体に比較的多量の磁性金属を置換することにより、結晶構造が元のZinc blende型から Wurtzite型に変化したり、NaCl型やNiAs型に変化することも報告されている。[1]表2-1は代表的なII-VI族化合物半導体に磁性金属イオンを置換した場合の結晶構造を示す。半磁性半導体には Mn, Fe およびCoを置換する例が多く、II-V族半導体に比較して大変広い組成比の試料を得ることが出来る。特にMnを置換する場合、 Mn^{2+} が軌道角モーメントを持たず、($l=0$)、しかもスピン磁気モーメントが大きい($s=5/2$) 為に理論的取扱が比較的容易であり、物理測定も容易である。これに対してFeやCoを置換した系では試料作成上の制約が大きい。

本研究に取り上げた、II-VI族系の半磁性半導体の磁氣的、光学的性質には工業的利用が可能な、光照射による有効g因子の増大 [2]、励起子の反射スペクトルにおける巨大Zeeman分裂 [3] あるいは磁気ポーラロン形成がある。[4] その他にもMn添加によって低温領域にスピングラス相が現れる事が知られている。[5] これらの性質は $Cd_{1-x}Mn_xTe$ について研究された例が多く、他の元素系でも類似した結果が得られるものと予想された。

$Zn_{1-x}Mn_xTe$ 系はMn置換量によらず、結晶の対称性がZinc blende型のまま安定しており、結晶作成自体も困難でない。結晶の格子定数, a ,とエネルギーギャップ, E_g 、のMn濃度依存性がFurdyna 等 [6] とTwardowskiら [7] によってそれぞれ次式のように与えられている。但しパラメータ x はZnに対するMnのモル比である。

$$a = 6.1037 + 0.2303 x \quad (\text{\AA}) \quad (300K)$$

$$E_g = 2.271 + 0.518 x \quad (\text{eV}) \quad (300K)$$

表 2 - 1. $A_{1-x}^{II}T_xB^{VI}$ (T = Mn, Fe, Co) 型 DMS の結晶構造

Alloy	Composition range	Crystal structure
$Zn_{1-x}Mn_xS$	$0.00 < x \leq 0.10$	Zinc blende
	$0.10 < x \leq 0.45$	Wurtzite
$Zn_{1-x}Mn_xSe$	$0.00 < x \leq 0.30$	Zinc blende
	$0.30 < x \leq 0.57$	Wurtzite
$Zn_{1-x}Mn_xTe$	$0.00 < x \leq 0.86$	Zinc blende
$Cd_{1-x}Mn_xS$	$0.00 < x \leq 0.50$	Wurtzite
	$0.94 < x \leq 1.00$	NaCl type
$Cd_{1-x}Mn_xSe$	$0.00 < x \leq 0.50$	Wurtzite
	$0.94 < x \leq 1.00$	NaCl type
$Cd_{1-x}Mn_xTe$	$0.00 < x \leq 0.77$	Zinc blende
	$0.96 < x \leq 1.00$	NiAs type
$Hg_{1-x}Mn_xS$	$0.00 < x \leq 0.37$	Zinc blende
$Hg_{1-x}Mn_xSe$	$0.00 < x \leq 0.38$	Zinc blende
$Hg_{1-x}Mn_xTe$	$0.00 < x \leq 0.75$	Zinc blende
$Zn_{1-x}Fe_xS$	$0.00 < x \leq 0.10$	Zinc blende
$Zn_{1-x}Fe_xSe$	$0.00 < x \leq 0.30$	Zinc blende
$Zn_{1-x}Fe_xTe$	$0.00 < x \leq 0.01$	Zinc blende
$Cd_{1-x}Fe_xSe$	$0.00 < x \leq 0.03$	Wurtzite
$Cd_{1-x}Fe_xTe$	$0.00 < x \leq 0.15$	Zinc blende
$Hg_{1-x}Fe_xSe$	$0.00 < x \leq 0.15$	Zinc blende
$Hg_{1-x}Fe_xTe$	$0.00 < x \leq 0.12$	Zinc blende
$Zn_{1-x}Co_xS$	$0.00 < x \leq 0.14$	Zinc blende
$Zn_{1-x}Co_xSe$	$0.00 < x \leq 0.05$	Zinc blende
$Cd_{1-x}Co_xSe$	$0.00 < x \leq 0.22$	Wurtzite

図2-1と2-2にそれぞれ格子定数とエネルギーギャップのMn濃度依存性を示した。 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系では a と E_g とがMn濃度に対して正の相関を示しているが $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系では格子定数がMn濃度に伴って減少する。[6] エネルギーギャップも小さくCdTeで1.595eVであるがMn添加に伴って増加する。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系を中心にII-VI系の磁性が調べられており、図2-3の磁気相図がSamarthら [8]によって決定されている。図中の記号P,AおよびSの領域はそれぞれ常磁性、反強磁性およびspin-glass状態を示している。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系と $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系は共に良く似た磁気相図を持ち、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系における反強磁性相の磁気構造はブラベクラスF（三面心）の場合のtype-IIIの白黒群に従う事が分かっており、スピングラス相においても同様な短範囲磁気秩序がある。図2-4はブラベクラスFのtype-III型白黒群を示している。白黒の球はそれぞれupとdownのスピンを示しており、 Mn^{2+} がその球の位置に統計的に入る。図2-5はGiebultowiczら [9]によって報告している $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ $x=0.44$ の中性子単結晶回折強度分布を示している。実験は中性子の吸収係数の極めて大きい ^{112}Cd を取り除いた試料を用いている。図2-5は逆格子の(0 0 1)面における散漫散乱強度分布を示しており、逆格子点 $1\ 1/2\ 0$ 点（1st Brillouin 帯域境界のW点）とその等価点で強度が高い。 $1\ 1/2\ 0$ 点とその等価点はtype-IIIの反強磁性秩序固有のものであるが、図2-4中に示されているように第一隣接金属イオンと第二隣接金属イオンとの間の交換積分 J_1 と J_2 の比が互いに正で、かつ、 J_2 が J_1 の半分以下の領域で安定である。このような特定の反強磁性秩序がspin-glass相の安定領域あるいはその直上温度に現れる事はspin-glass状態の一般的理解と矛盾するかもしれない。つまり、spin-glass状態は複数の磁気秩序が動的ないし静的な競合状態にあると理解されているが、本実験では1種類の磁気秩序だけが安定しているように見える。しかし、spin-glass転移温度より20K以上高温になるとこの系は常磁性状態に戻っており、帯磁率の温度依存性はCurie-Weiss的になっている。

II-VI族化合物半導体に磁性イオンを置換した半磁性半導体の最も著しい物性的特徴は光励起による磁気ポーラロンの発生である。磁気ポーラロン自体の研究がこの半導体系で大きく発展したと言える程この系における研究例が多い。磁気ポーラロンとは、何らかの原因で導入されたキャリア(s電子)が複数の磁性イオンのスピン(d電子)と局所的にsd相互作用にを起こし、それによって複数のスピンの整列させられた状態である。この磁気ポーラロンには3種類あり、系の中に本来有るキャリアが島状のポーラロンを静的に発生させる free magnetic polaron; FMP、光による励起に

図2-5. $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.44$ における逆格子散漫散乱強度分布 [9]

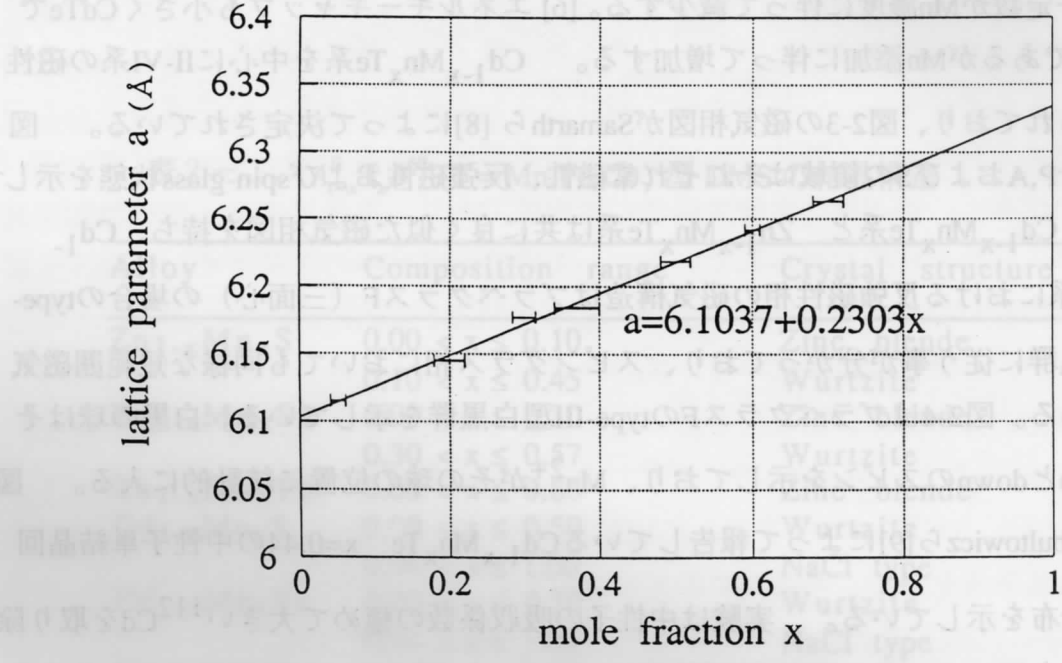


図 2 - 1 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の格子定数の Mn 濃度変化

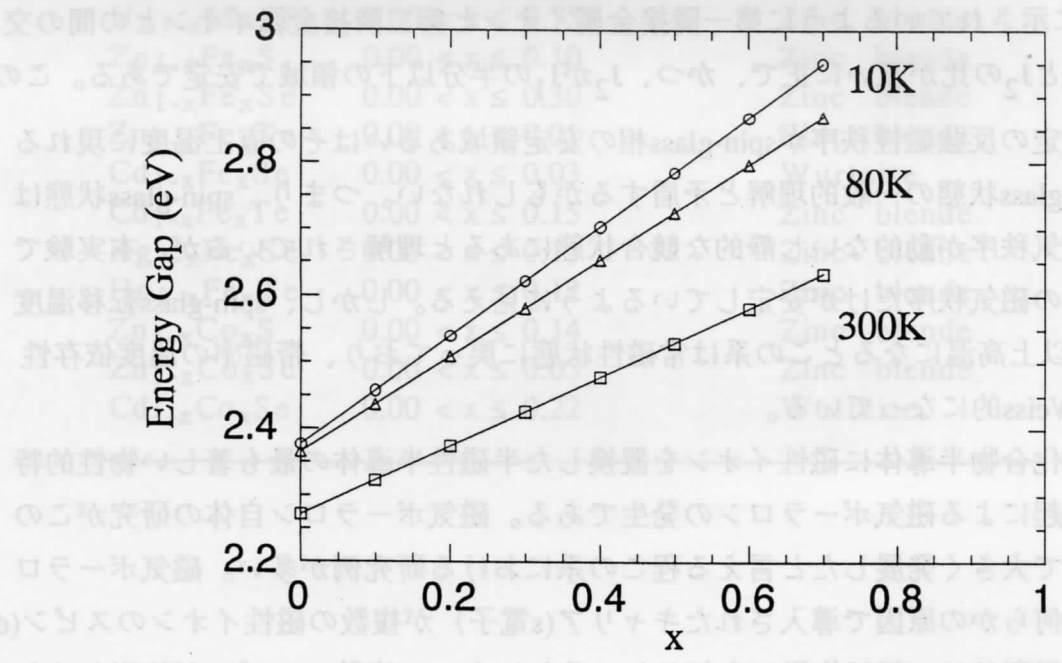


図 2 - 2 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ のエネルギーギャップの Mn 濃度変化

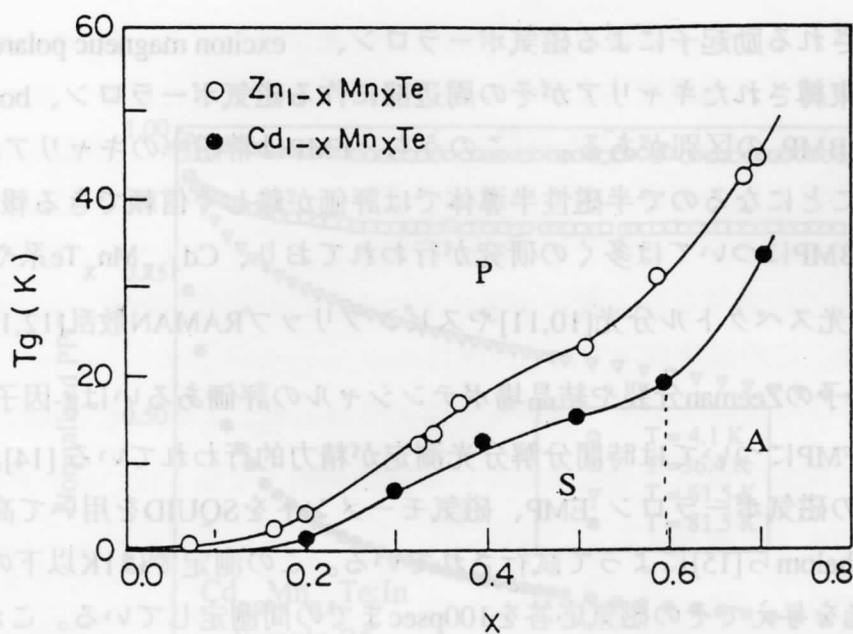


図 2-3. $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 及び $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の磁気相図

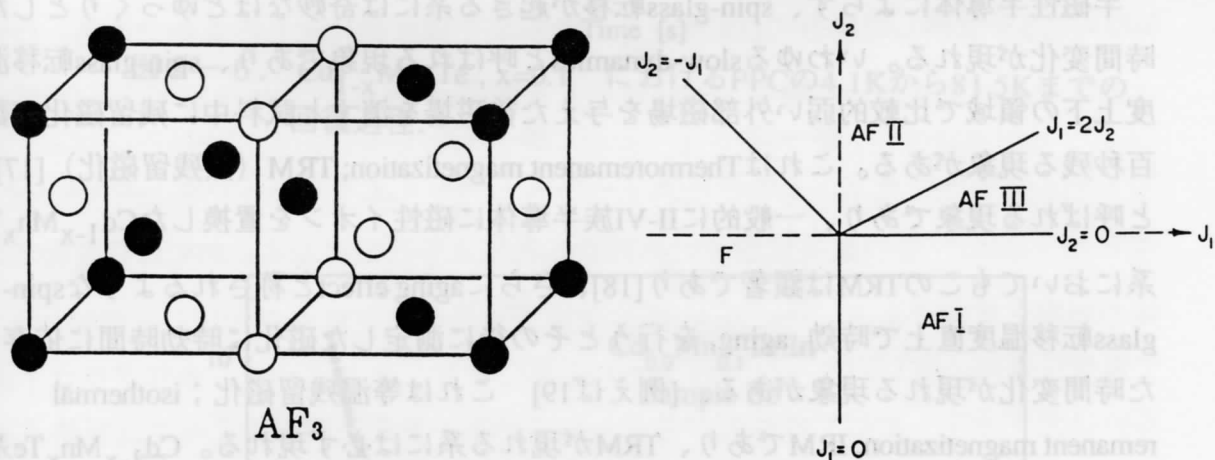


図 2-4. type-III の反強磁性磁気構造

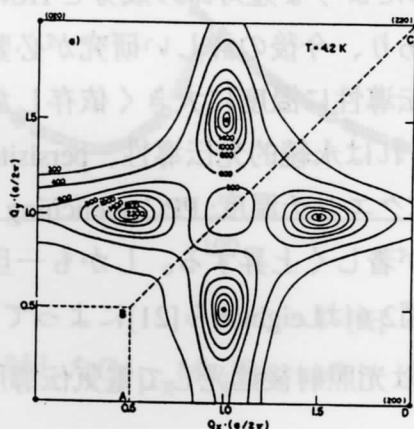


図 2-5. $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.44$ における磁気散漫散乱強度分布[9].

よって系に導入される励起子による磁気ポーラロン、exciton magnetic polaron ;EMP、および不純物に束縛されたキャリアがその周辺部に作る磁気ポーラロン、bound magnetic polaron; BMP, の区別がある。このうち、FMPは帯磁率のキャリア濃度依存性から求めることになるので半磁性半導体では評価が難しく信頼できる報告例がない。EMPとBMPについては多くの研究が行われており、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系や $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 系等の発光スペクトル分光[10,11]やスピントリッパRAMAN散乱[12,13]によって Mn^{2+} の3d電子のZeeman分裂や結晶場ポテンシャルの評価あるいはg-因子等が調べられている。FMPについては時間分解分光測定が精力的に行われている [14]。光励起された短寿命の磁気ポーラロン ;EMP、磁気モーメントをSQUIDを用いて高速測定する試みもAwschalomら[15]によって試行されている。この測定では1K以下の領域で約2eVのパルス光を与えてその磁気応答を100psecまでの間測定している。これらの研究では多層の量子井戸形成された半磁性半導体におけるスピントリッパ散乱や時間分解巨大ファラデー回転[16]が測定されている。

半磁性半導体によらず、spin-glass転移が起きる系には奇妙なほどゆっくりとした時間変化が現れる。いわゆるslow-dynamicsと呼ばれる現象であり、spin-glass転移温度上下の領域で比較的弱い外部磁場を与えた後磁場を消すと試料中に残留磁化が数百秒残る現象がある。これはThermoremanent magnetization; TRM（熱残留磁化）[17]と呼ばれる現象であり、一般的にII-VI族半導体に磁性イオンを置換した $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系においてもこのTRMは顕著であり[18]、さらにaging effectと称されるようなspin-glass転移温度直上で時効, aging, を行うとその後に測定した磁化に時効時間に依存した時間変化が現れる現象がある。[例えば19] これは等温残留磁化; isothermal remanent magnetization; IRMであり、TRMが現れる系には必ず現れる。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系においてもこのIRMの報告がある。[20] これらのslow dynamicsは磁気ポーラロンの消長と直接関係の無い現象だと考えられているが、II-VI族半磁性半導体中に光励起される磁化[16]の中にも報告されたような短寿命の成分とTRMやIRMと認識されるような超寿命の成分が有るはずであり、今後の詳しい研究が必要である。

化合物半導体等における電気伝導性に温度に大きく依存した光電効果に最近注目が集まっている。[例えば21] これは永続的光伝導性、persistent photoconductivity; PPCと呼ばれる現象であり、PPCクエンチ温度; PPC quenching temperature, 以下の領域で光電性が現れ、電気伝導率が著しく上昇する。しかも一旦光照射した試料は遮光後も数百秒間伝導性を保つ。図2-6はLeightonら[21]によって報告されている $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te:In}$ のPPCを示す。試料は光照射後遮光して電気伝導度の時間変化を図中の

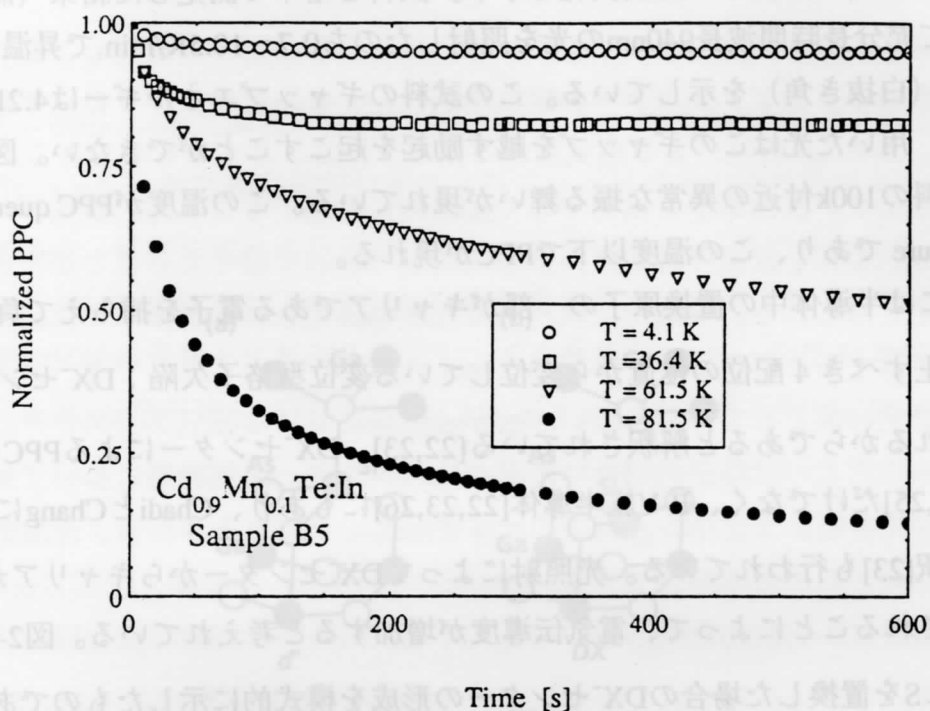


図 2-6. $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.1$ における PPC の 4.1 K から 81.5 K までの回復過程.

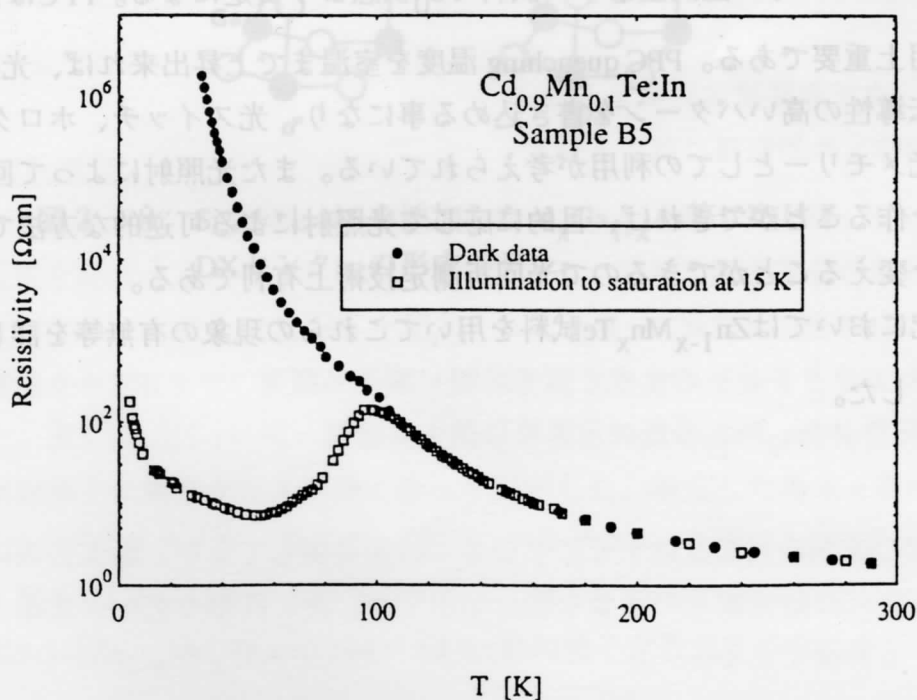


図 2-7. 光照射した $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.1$ の電気抵抗率の温度依存性.

各温度で測定している。低温領域ほど長時間光電効果が持続する。図2-7は同じ著者が測定した電気抵抗率の温度変化を示す。試料を暗中で測定した結果（黒丸）と15Kにて充分長時間波長940nmの光を照射したのち0.7~10.5K/min.で昇温して測定した結果（白抜き角）を示している。この試料のギャップエネルギーは4.2Kで1.754eVであり、用いた光はこのギャップを越す励起を起こすことができない。図中には光照射試料の100K付近の異常な振る舞いが現れている。この温度がPPC quenching temperature であり、この温度以下でPPCが現れる。

PPCには半導体中の置換原子の一部がキャリアである電子を捕らえて負に帯電し、本来静止すべき4配位の位置から変位している変位型格子欠陥；DX⁻センター、が励起されるからであると解釈されている[22,23]。DX⁻センターによるPPCはII-VI族半導体[24,25]だけでなく、II-V族半導体[22,23,26]にもあり、ChadiとChangによって理論的解釈[23]も行われている。光照射によってDX⁻センターからキャリアが半導体中に放出されることによって、電気伝導度が増加すると考えられている。図2-8はGaAsにSiないしSを置換した場合のDX⁻センターの形成を模式的に示したものである。[23]

ここでd₀は電気的中性を保った状態であり、DX⁻は本来4配位であるべき状態が中心原子の変位によって3配位となり、電子1個をトラップした状態である。DX⁻センターはMn²⁺等の置換量が多い試料でd₀状態より安定になる。PPCは化合物半導体の利用上重要である。PPC quenching 温度を室温まで上昇出来れば、光照射によって電気伝導性の高いパターンを書き込める事になり、光スイッチ、ホログラフィあるいは光メモリーとしての利用が考えられている。また光照射によって回折格子のパターンを作ることができれば、目的に応じて光照射による可逆的な方法で回折格子の間隔を変えることができるので光回折測定技術上有利である。

本研究においてはZn_{1-x}Mn_xTe試料を用いてこれらの現象の有無等を詳しく検討することとした。

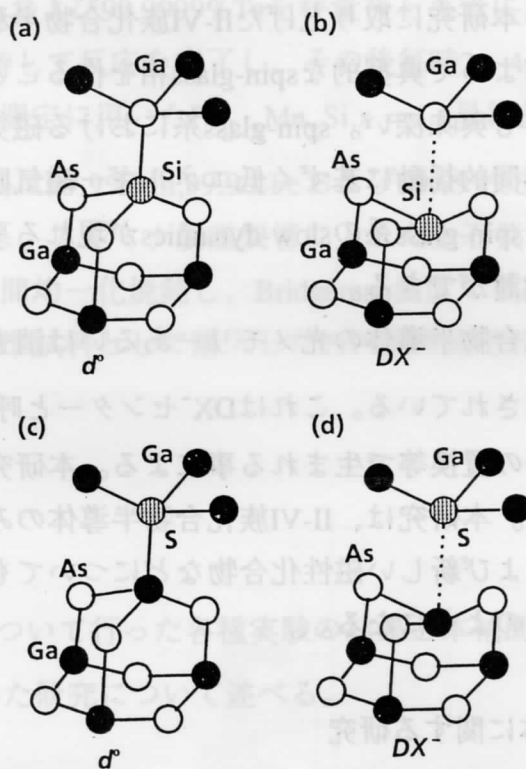


図2-8. SiないしはSを添加した $Al_xGa_{1-x}As$ 等におけるDXセンターの形成モデル.

3. 研究の目的

本研究はエネルギーギャップの広いII-VI族化合物半導体に着目し、磁性元素を置換して帯磁率、磁気クラスターの磁気構造、spin-glass転移に伴う動力学効果、光伝導特性、Brillouin散乱による磁気励起の測定を行おうとするものである。3d電子を持つ磁性イオン置換原子を磁場中等で光学的に励起することで、磁気ポーラロンが発生する。これを直接中性子非弾性散乱測定によって捕らえることができれば有意義な知見を得られる。本研究に取り上げたII-VI族化合物半導体系では磁性元素をII族金属と置換することによって典型的なspin-glass相を作ることでもでき、spin-glass転移自体の研究対象としても興味深い。spin-glass系における磁気クラスターの分布や短範囲規則性あるいは時間的揺動に基づく低エネルギー磁気励起について研究を進めることができる。またspin-glass系のslow-dynamicsが現れる事から、理論的なシミュレーションとの比較検討ができる。

光伝導性はII-VI族化合物半導体の光メモリーあるいは消去可能な回折格子材料への可能性から最近注目されている。これはDX⁻センターと呼ばれる深い準位をつくる格子欠陥が磁性原子の置換等で生まれる事による。本研究においても光伝導性の詳細な測定を計画した。本研究は、II-VI族化合物半導体のみならず、化合物中の磁性不純物・置換元素および新しい磁性化合物などについても対象を広げて実施した。それらを列記すると次のようになる。

- 1 擬一次元金属錯体に関する研究
- 2 LaBSiO₅の相転移に関する研究
- 3 ハルデン磁性体NDMAZのハルデンギャップ測定
- 4 CaNiNの合成と磁性に関する研究
- 5 ZnSe(110)面上のZnCdSe量子ドットに関する研究
- 6 ZnSeドットアレーの生成と蛍光特性に関する研究
- 7 強磁性体Sm₂Fe₁₇のFeのAl置換に関する研究

本研究の成果の大部分はすでに学会等で口頭発表してるが、論文公表は十分でない。本報告には研究成果の重要な部分を示すが、更に詳細なデータを添えて順次論文公表する計画である。

4. 試料調製

本章で述べる実験結果の大部分は $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 単結晶ないしは多結晶を用いて得たものである。Brillouin散乱測定には $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}, x = 1.4$ 単結晶とFePt単結晶を用いた。 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ ($x = 0.1 - 0.7$) 結晶試料は東北大科学計測研究所の岡教授によって提供されたものである。試料作成は佐藤敏雄技官によってBridgeman法で行われた。原料は99.9999%Zn、99.98%Mnおよび99.9999%Teを秤量後石英管に真空封入して1200℃から1300℃で約50時間保持して反応を完了し、その後毎時2~4mmの成長速度で結晶成長させた。Brillouin散乱測定に用いた $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}, x = 1.4$ 単結晶も同様にBridgeman法で作成されている。原料は99.9%Mn, 99.9%Feおよび99.999%Siであり、アーク溶解した後塊状試料を粉碎し、アルミナ製磁製管に入れた上石英管に真空封入した。この試料を900℃にて1週間均一化焼鈍し、Bridgeman装置で単結晶化している。Brillouin散乱測定には標準試料として購入したFePt単結晶磁石を用いている。

5. 実験結果

$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系試料について行った各種実験の結果と本補助金によって整備したBrillouin散乱装置を用いた研究について述べる。

5.1 粉末回折測定

入手した単結晶試料の化学組成は仕込み組成と多少ことになっている。まず、単結晶試料の組成を確認するために試料の一部を取り欠いて粉末試料を作り粉末x線回折測定とSQUIDによる磁化測定を行った。それらによって化学組成を決定した試料について室温から20Kまでの範囲で粉末x線回折測定を行って格子定数温度依存性を測定した。表5-1と図5-1に用いた装置の概略と低温装置を示す。粉末試料はSi単結晶製の無反射板上に真空グリスを薄く塗って固定した。測定した粉末x線回折強度はRietveld法（プロファイル一致法の一つ）のプログラム、RIETAN[27]を用いて解析している。図5-2は室温に於ける粉末回折図形と解析の結果の強度プロファイルの例を示し、図5-3は $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}, x=0.194 \sim .654$ 試料の格子定数温度依存性を示す。図5-2において散乱角32度付近には不純物 MnTe_2 のピークが現れているので解析の対象外とした。図5-3に示した格子定数温度依存性は室温の格子定数によって規格化したも

回折装置	RAD-C (理学電気 (株))
線源	CuK α ($K \alpha_1=1.5405 \text{ \AA}$ 、 $K \alpha_2=1.5443 \text{ \AA}$)
管電圧及び管電流	30kV、15mA
モノクロメータ	パイロ黒鉛
スリット	DS=0.5°、RS=0.15mm、SS=0.5°
スキャン法	ステップスキャン
スキャン範囲	$20^\circ < 2\theta < 100^\circ$
Fixed Time	5~10 秒
サンプリング間隔	0.04°
測定温度	20~300K

表 5 - 1 . 低温での粉末 X 線測定条件

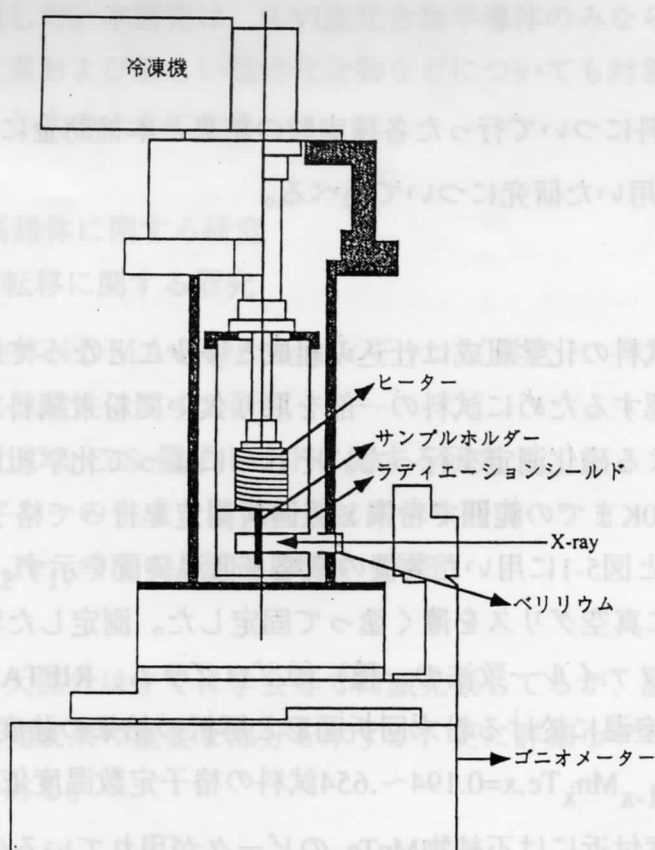


図 5 - 1 . 低温粉末 X 線装置

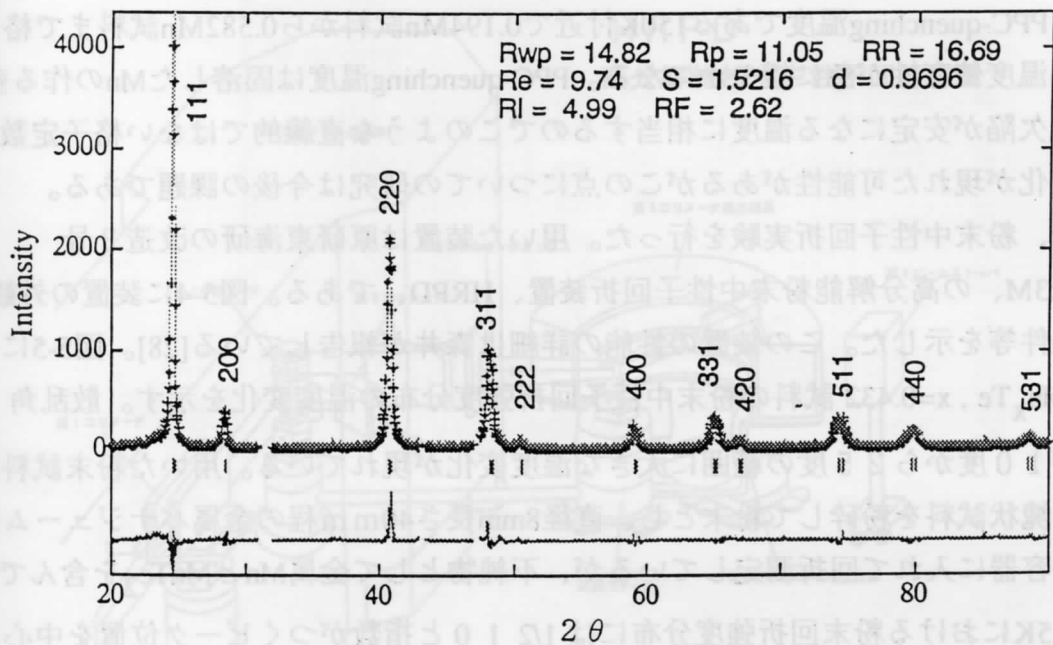


図 5 - 2. Rietveld 解析結果

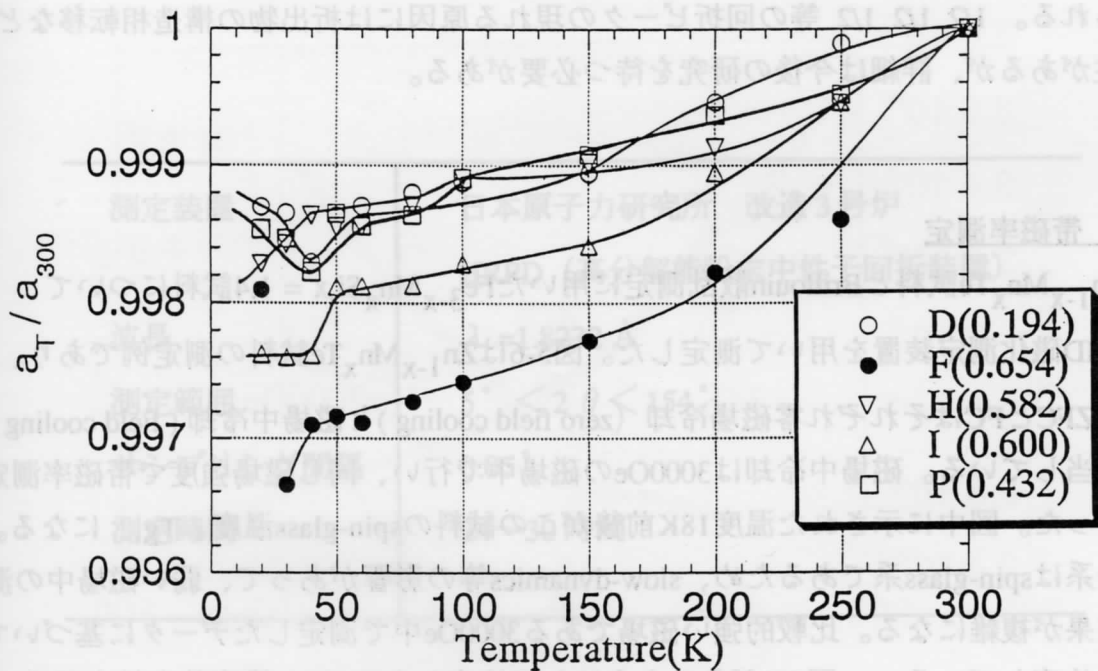


図 5 - 3. 格子定数の温度依存性

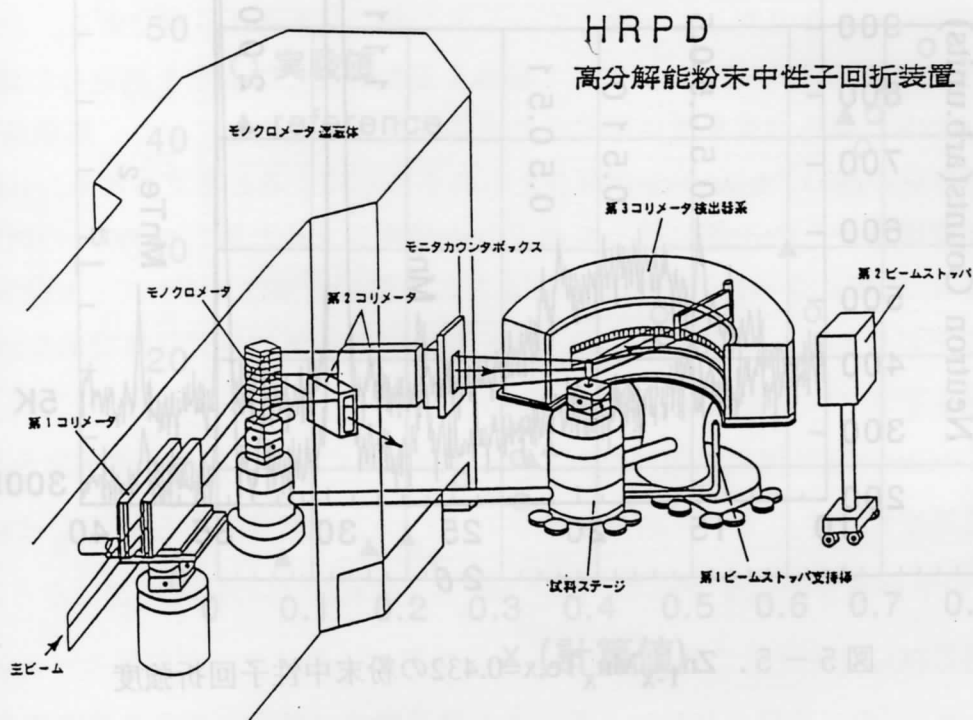
のである。0.194Mn試料を除く試料には約40K付近に格子定数の異常が見られ、spin-glass転移温度に近いことから、磁気転移との関連が示唆される。又、5.5節に説明するPPC-quenching温度である150K付近で0.194Mn試料から0.582Mn試料まで格子定数の温度依存性が急に緩やかになる。PPC-quenching温度は固溶したMnの作る変位の伴う欠陥が安定になる温度に相当するのでこのような直線的ではない格子定数の温度変化が現れた可能性があるがこの点についての研究は今後の課題である。

次に、粉末中性子回折実験を行った。用いた装置は原研東海研の改造3号炉、JRR3M、の高分解能粉末中性子回折装置、HRPD、である。図5-4に装置の外観と測定条件等を示した。この装置の性能の詳細は森井が報告している[28]。図5-5に $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.432$ 試料の粉末中性子回折強度分布の温度変化を示す。散乱角 (2θ) が10度から25度の範囲に大きな温度変化が現れている。用いた粉末試料は大きな塊状試料を粉碎して粉末とし、直径8mm長さ40mm程の金属バナジウム製の試料容器に入れて回折測定しているが、不純物として金属Mnと MnTe_2 を含んでいた。5Kにおける粉末回折強度分布には $1/2\ 1\ 0$ と指数がつくピーク位置を中心として幅の広い強い散漫散乱強度が現れた。これに加えて、 $1/2\ 1/2\ 1/2$ ないし $1/2\ 1/2\ 1$ と指数をつけることのできる回折ピークも現れた。これらの低温に於ける散乱強度の中でも、散漫散乱強度はspin-glass転移に伴う短範囲磁気秩序の安定化によると考えられる。 $1/2\ 1/2\ 1/2$ 等の回折ピークの現れる原因には析出物の構造相転移など可能性があるが、詳細は今後の研究を待つ必要がある。

5.2 帯磁率測定

$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料とBrillouin散乱測定に用いた $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$, $x = 1.4$ 試料についてSQUID磁化測定装置を用いて測定した。図5-6は $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料の測定例であり、図中のZFCとFCはそれぞれ零磁場冷却 (zero field cooling) と磁場中冷却 (field cooling) に相当している。磁場中冷却は3000Oeの磁場中で行い、同じ磁場強度で帯磁率測定も行った。図中に示された温度18K前後がこの試料のspin-glass温度、 T_g , になる。この系はspin-glass系であるため、slow-dynamics等の影響があつて、弱い磁場中の測定結果が複雑になる。比較的強い磁場である3000Oe中で測定したデータに基づいて T_g を決定している。図5-7がそのようにして決定した T_g のMn濃度依存性を示す。

図中の白丸が測定点であり、三角形が文献値[8]を示す。今回の測定値は文献値との一致が良い。この系では帯磁率には磁場依存性もある。図5-8は図5-6の測定に用いた試料と同一のものを100Oeの弱い磁場で測定した結果を示す。零磁場冷却試料の帯



高分解能粉末中性子回折装置 HRPD

測定装置	日本原子力研究所 改造3号炉 HRPD (高分解能粉末中性子回折装置)
波長	$\lambda = 1.8232 \text{ \AA}$
測定範囲	$5^\circ < 2\theta < 154^\circ$
サンプリング間隔	0.05°
測定時間	24~30 時間

図5-4. 高分解能粉末中性子回折装置、HRPDの外観と測定条件.

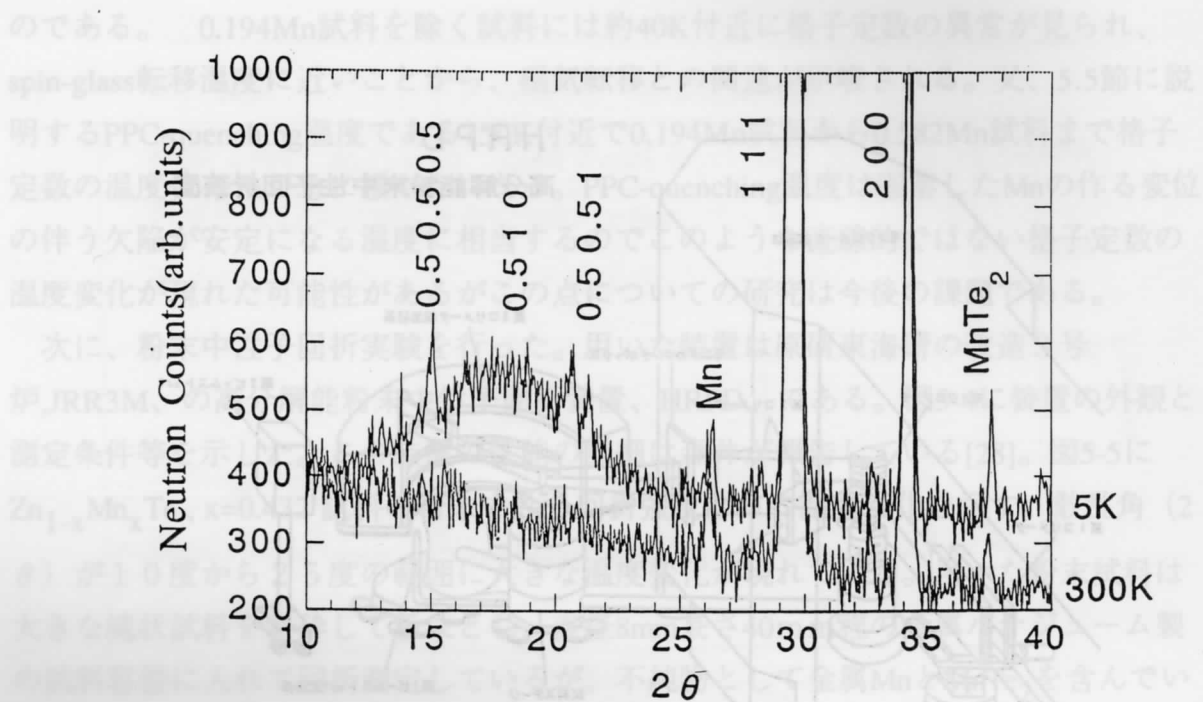


図 5 - 5 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}, x=0.432$ の粉末中性子回折強度

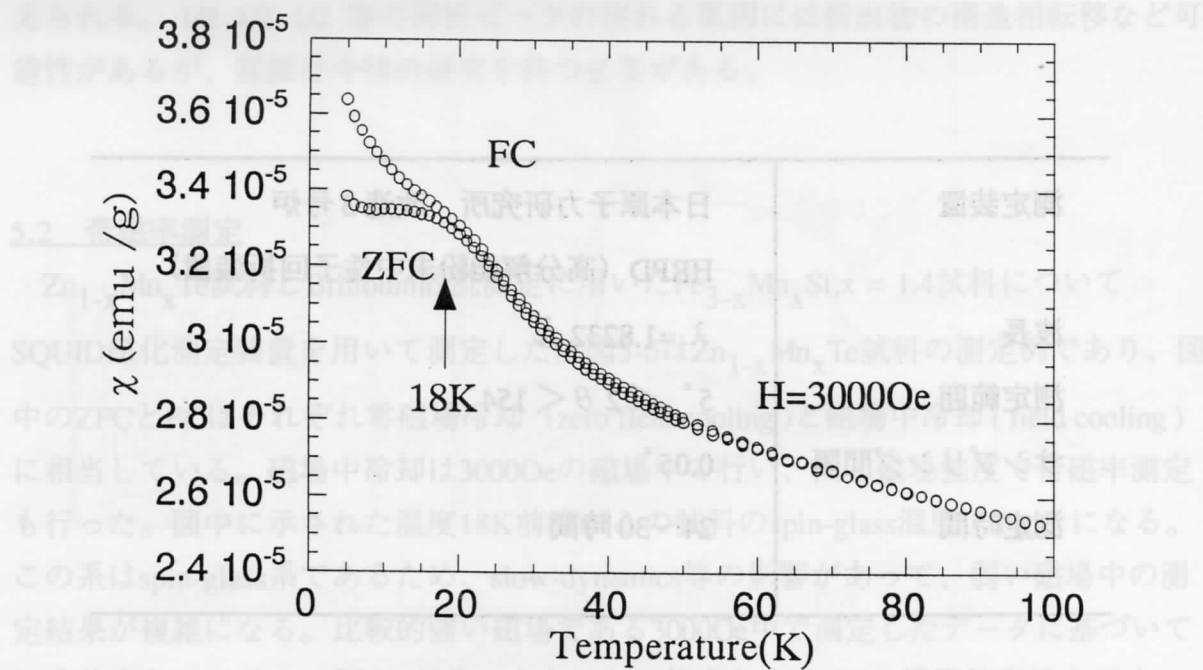


図 5 - 6 . $H=3000\text{Oe}$ での帯磁率曲線 ($x=0.432$)

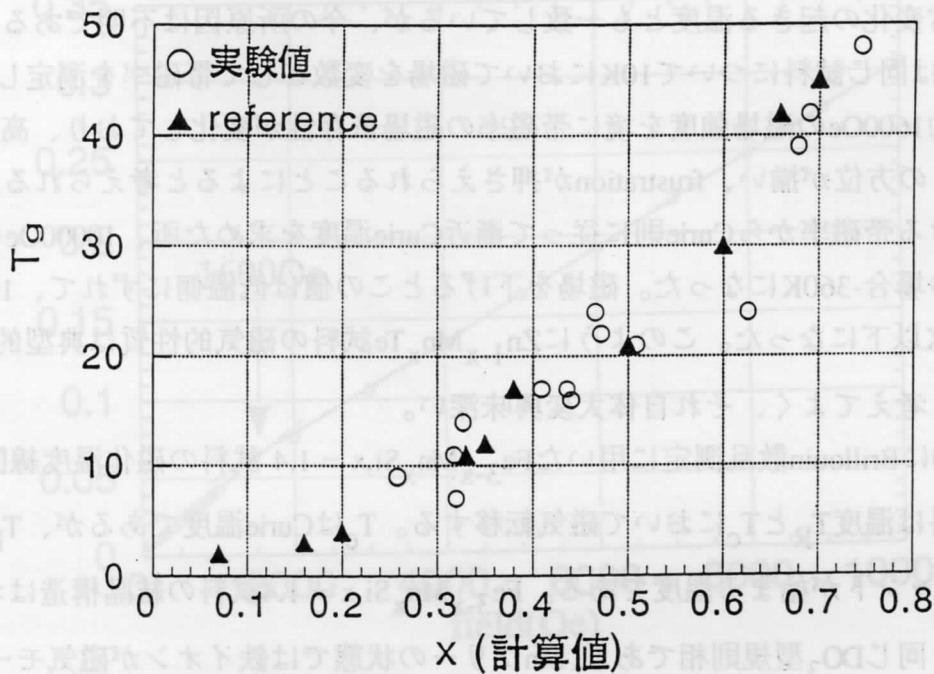


図 5-7. Mn 濃度とスピングラス転移点の関係

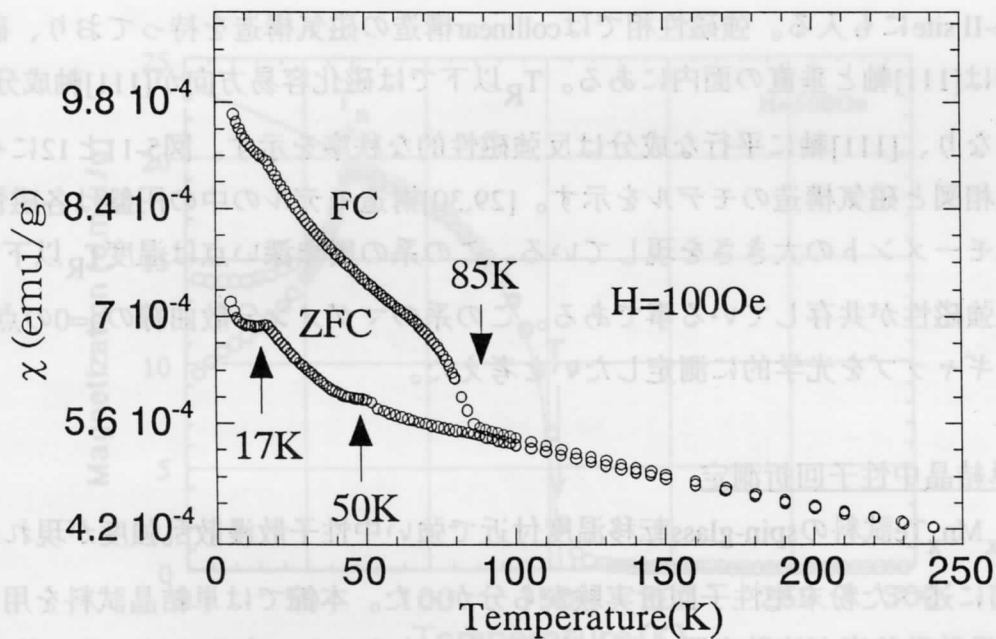


図 5-8. 帯磁率曲線 ($x=0.596$)

磁率が広い温度領域で磁場中冷却試料よりも低く、しかも20Kと50Kに異常な帯磁率が記録されている。20Kは T_g とほぼ一致しているが、50Kは格子定数温度依存性にある異常変化の起きる温度とも一致しているが、今の所原因は不明である。

図5-9は同じ試料について10Kにおいて磁場を変数として帯磁率を測定した結果を示す。約1600Oeの磁場強度を境に帯磁率の磁場依存性が変化しており、高磁場領域ではspinの方位が揃い、frustrationが押さえられることによると考えられる。100K以上における帯磁率からCurie則に従って漸近Curie温度を求めた所、10000Oeの磁場中の曲線の場合-360Kになった。磁場を下げる则该の値は低温側にずれて、100Oeの場合-1000K以下になった。このように $Zn_{1-x}Mn_xTe$ 試料の磁氣的性質は典型的なspin-glass系と考えてよく、それ自体大変興味深い。

図5-10にBrillouin散乱測定に用いた $Fe_{3-x}Mn_xSi, x = 1.4$ 試料の磁化温度線図を示す。この試料は温度 T_R と T_C において磁気転移する。 T_C はCurie温度であるが、 T_R はMnのspinにキャントが始まる温度である。 $Fe_{3-x}Mn_xSi, x = 1.4$ 試料の結晶構造はホイスラー合金と同じ DO_3 型規則相であり、Mnフリーの状態では鉄イオンが磁気モーメント $2.2 \mu_B$ と $1.35 \mu_B$ の二種類の状態にある。この結晶構造は体心立方晶を基本構造としており、体心位置にあるFe-II siteの鉄イオンのモーメントが小さく外枠のFe-I siteの鉄イオンのモーメントが大きい。MnはFe-I siteに選択的に入りやすく、置換量が多ければFe-II siteにも入る。強磁性相ではcollinear構造の磁気構造を持っており、磁化容易方向は[111]軸と垂直の面内にある。 T_R 以下では磁化容易方向が[111]軸成分を持つようになり、[111]軸に平行な成分は反強磁性的な秩序を示す。図5-11と12にそれぞれ磁気相図と磁気構造のモデルを示す。[29,30]構造モデルの中の円盤は各磁性原子の磁気モーメントの大きさを現している。この系の興味深い点は温度 T_R 以下で強磁性と反強磁性が共存している事である。この系のマグノン分散曲線の $q=0$ の点のエネルギーギャップを光学的に測定したいと考えた。

5.3 単結晶中性子回折測定

$Zn_{1-x}Mn_xTe$ 試料のspin-glass転移温度付近で強い中性子散漫散乱強度が現れることが5.2節に述べた粉末中性子回折実験から分かった。本節では単結晶試料を用いて、この散漫散乱強度が波数空間のどの位置に存在するのか、あるいは、その強度の温度依存性や磁場依存性は如何なるものかを調べた結果を示す。用いた試料は粉末試料と同じ組成の $x=0.432$ 試料であり、太さ約8mm長さ役25mm程の丸棒状である。

序論に述べたように、II-VI族半導体に磁性元素を置換した系における中性子散漫

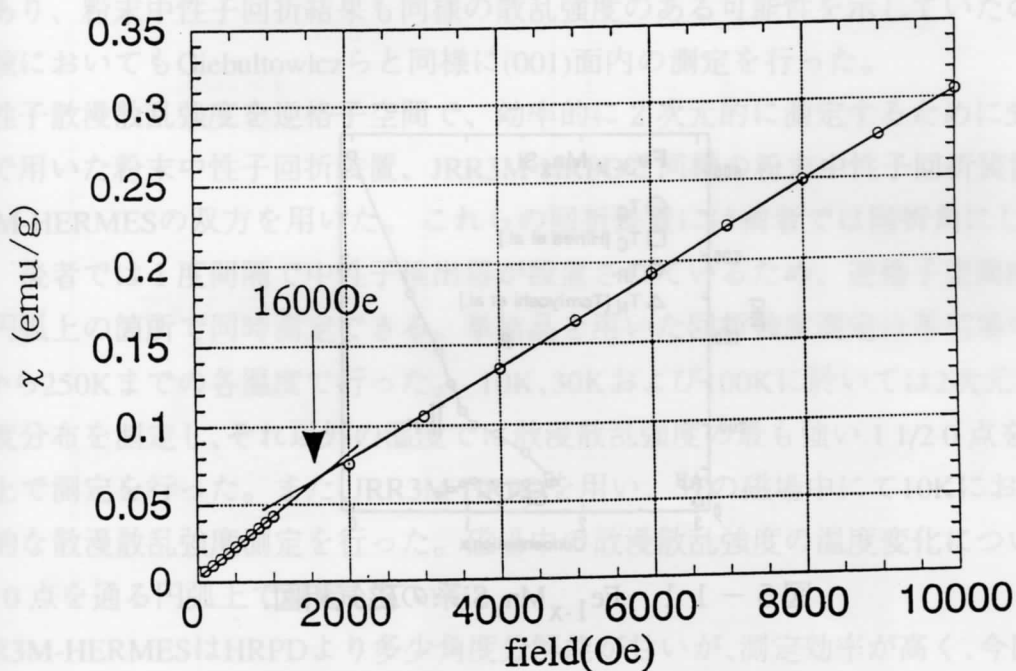


図 5 - 9 . $x=0.432$ の試料での磁化曲線

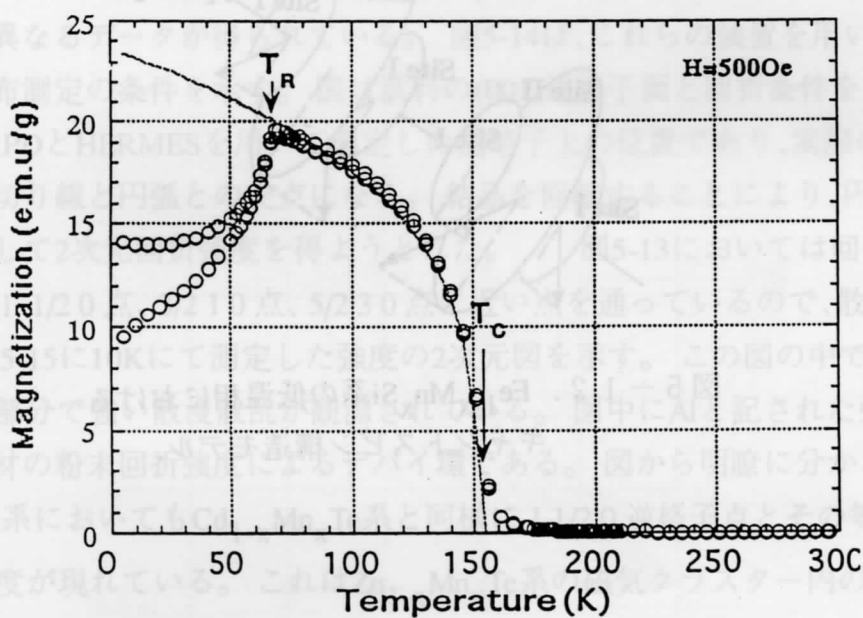
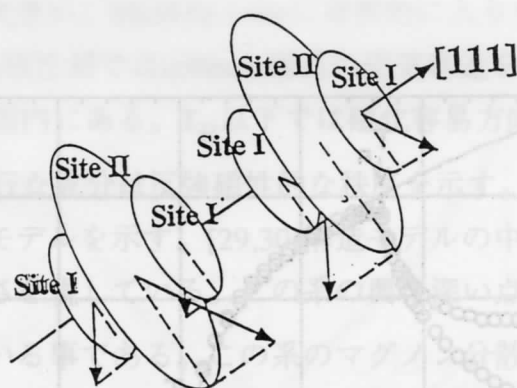


図 5 - 10 . $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}, x=0.44$ の磁化率温度依存性.

Figure 5-9 is a plot of temperature T (in K) versus concentration x for the $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ system. The x-axis represents concentration x and ranges from 3 to 0. The y-axis represents temperature T in Kelvin, ranging from 0 to 800. The plot shows the temperature dependence of the magnetic transition temperature T_C . The data points are categorized as follows: open circles for T_C , open squares for T_C (Hines et al.), filled circles for T_R , and open triangles for T_N (Tomiyoshi et al.). The graph is divided into three regions: AF (Antiferromagnetic) for $x > 2.8$, CF (Canted Ferromagnetic) for $2.8 > x > 1.2$, and P (Paramagnetic) for $x < 1.2$. A double arrow labeled 'F' indicates the transition from the CF region to the P region at $x \approx 1.2$. The transition temperature T_C increases sharply as x decreases, reaching approximately 850 K at $x=0$.



3.3 準結晶や分子面近置定

散乱回折強度測定为例としてはGiebultowiczら[9]による $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ $x=0.44$ 試料のも
のがあり、粉末中性子回折結果も同様の散乱強度のある可能性を示していたので、
本実験においてもGiebultowiczらと同様に(001)面内の測定を行った。

中性子散漫散乱強度を逆格子空間で、効率的に2次元的に測定するために5.1節の
実験で用いた粉末中性子回折装置、JRR3M-HRPDと同種の粉末中性子回折装置
JRR3M-HERMESの双方を用いた。これらの回折装置には前者では回折角にして2度
間隔、後者では1度間隔で中性子検出器が設置されているため、逆格子空間内に引
いた円弧上の箇所で同時測定できる。単結晶を用いた回折強度測定は零磁場中では
10Kから250Kまでの各温度で行った。10K、30Kおよび100Kに於いては2次元的な散
乱強度分布を測定し、それ以外の温度では散漫散乱強度の最も強い $1\ 1/2\ 0$ 点を通る
円弧上で測定を行った。また、JRR3M-HRPDを用い、5Tの磁場中にて10Kにおける2
次元的な散漫散乱強度測定を行った。磁場中の散漫散乱強度の温度変化についても
 $1\ 1/2\ 0$ 点を通る円弧上で測定している。

JRR3M-HERMESはHRPDより多少角度分解能が甘い、測定効率が高く、今回の測
定においても信頼性の高いデータが得られた。図5-13は、HERMESとHRPDを用いた
測定の例を示す。回折角(2θ) 50° 以内の領域の幅の広いピークが散漫散乱強度であ
る。幅の狭いピークはアルミニウム製試料支持棒で回折された粉末回折線である。
HERMESで得た回折強度のうち、 50° から 70° 付近の幅の広い2本のピークも散乱散
乱強度である。零磁場中で同様に測定しても、2種の装置の角度分解能が異なるため、
多少印象の異なるデータが得られている。図5-14は、これらの装置を用いて行った
回折強度分布測定条件を示す。図は試料の(001)逆格子面と回折条件を示している。
各円弧がHRPDとHERMESを用いて測定した逆格子上の位置であり、実際の測定点が
円弧上の区切り線と円弧との交点になる。結晶を回転することにより、円弧の位置
を順次動かして2次元回折強度を得ようとした。図5-13においては回折条件を満

たす円弧が $1\ 1/2\ 0$ 点、 $3/2\ 1\ 0$ 点、 $5/2\ 3\ 0$ 点に近い点を通っている、散漫散乱強度
が高い。図5-15に10Kにて測定した強度の2次元図を示す。この図の中で緑から赤に
着色された部分で強い散漫散乱が観測されている。図中にAlと記された強度が試料
支持台のAl材の粉末回折強度によるデバイ環である。図から明瞭に分かるように
 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系においても $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系と同様に $1\ 1/2\ 0$ 逆格子点とその等価位置に
強い散乱強度が現れている。これは $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系の磁気クラスター内の磁氣的短範
囲規則性はtype-III型である事を示している。この結果は本研究によって初めて得ら
れたものであり、図5-15は東北大学金属材料研究所のJRR3M-HERMES回折装置の説
明用ホームページや東大物性研の研究報告書の表紙の一部に使われている。散漫散

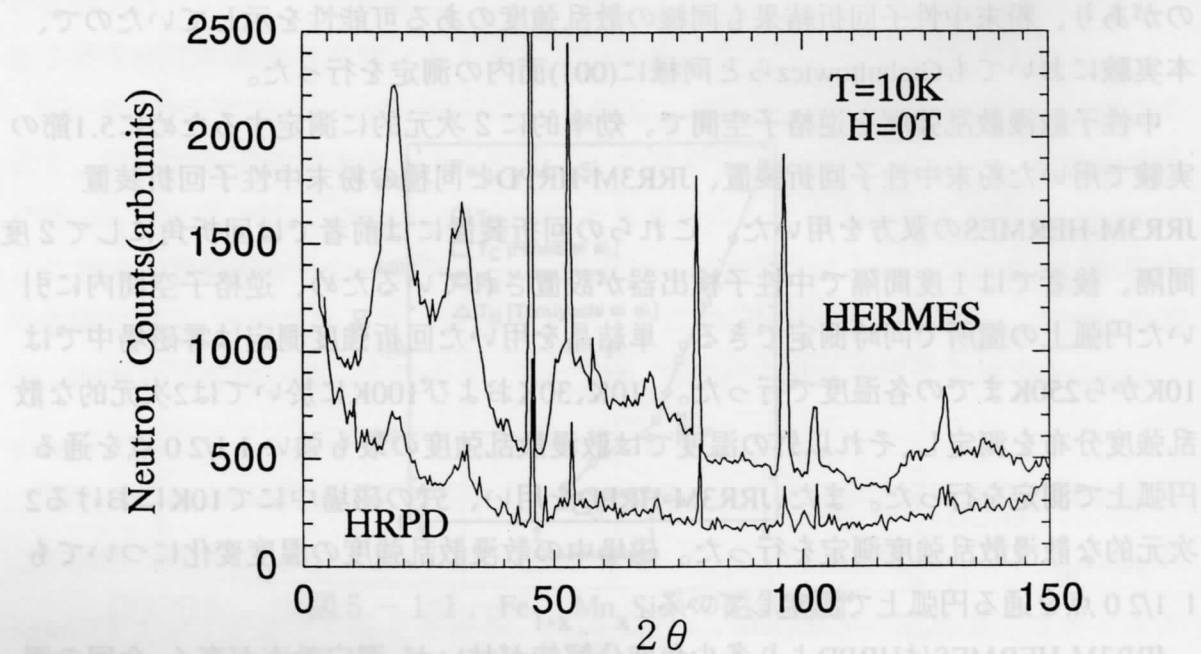


図5-13. HERMES 及び HRPD のデータの比較 (10K、0T)

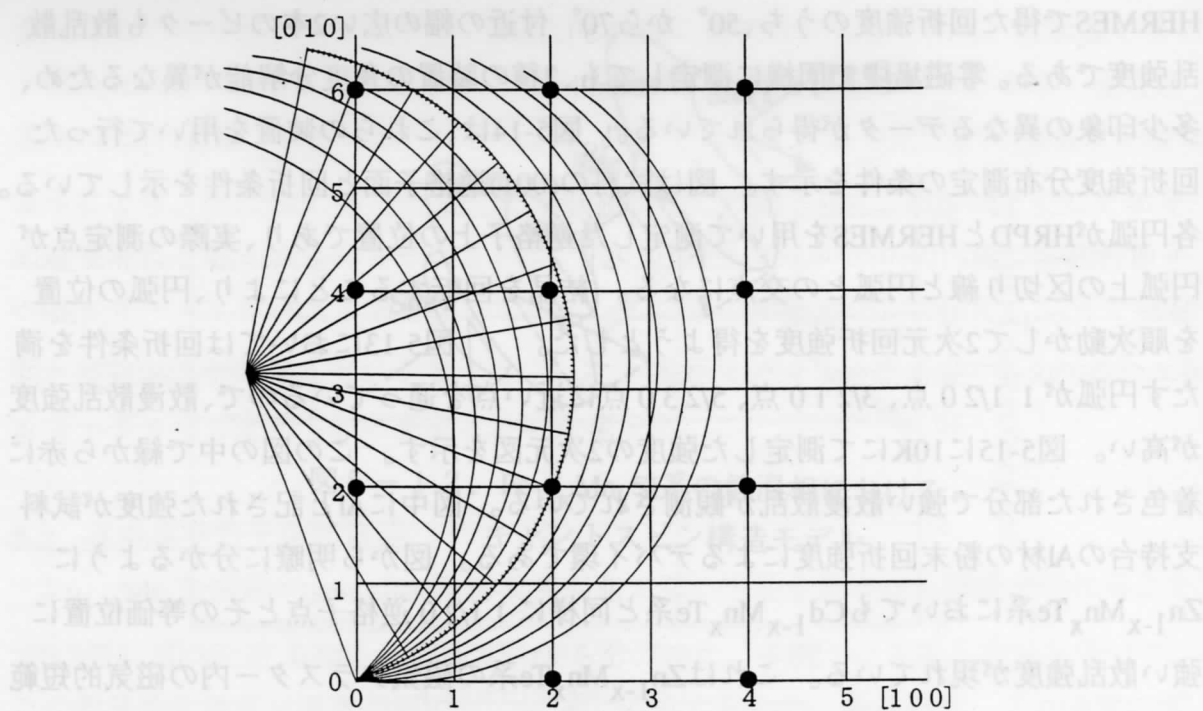


図5-14. $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}, x=0.432$ 単結晶の中性子回折条件.

各円弧上の強度を測定した.

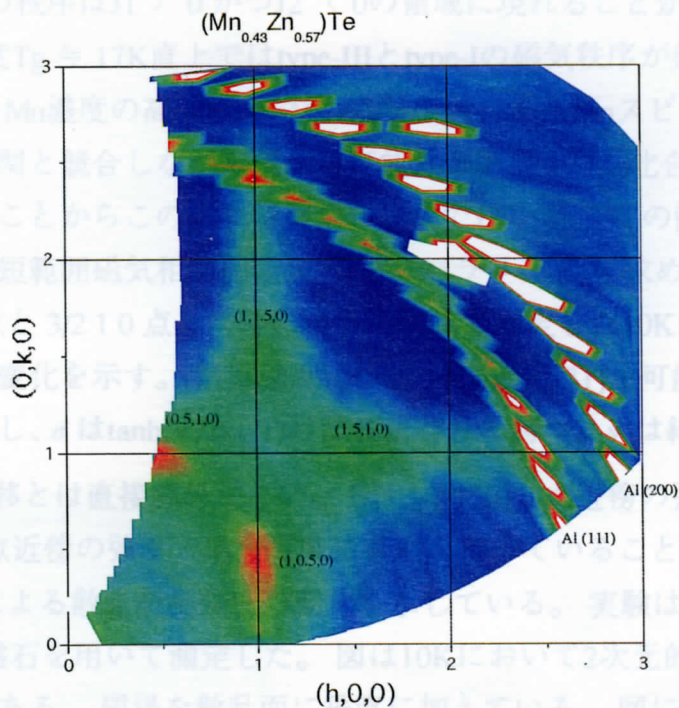


図 5 - 1 5 . JRR3M-HERMESによって測定した単結晶中性子回折強度の 2 次元図.
測定温度は10Kであり、spin-glass転移温度 (17-18K) よりも低い。

5.4系中性子散乱測定

中性子回折測定によって $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系において低温領域にtype-IIIの磁気秩序を有

乱強度が $1\ 1/2\ 0$ 点や $1\ 2\ 1\ 0$ 点で強く、 $1\ 3/2\ 0$ 点や $3/2\ 1\ 0$ 点で弱いのはこの中性子散乱強度の原因が波数に強い依存性のある磁気形状因子によるからである。図5-16は零磁場中の散漫散乱強度の温度変化を示している。散漫散乱強度は低温程強く、100K付近では大変弱くなっているが、完全に消えるのは室温付近である。30Kの図面で大変興味深いのは散漫散乱強度分布が、 $1\ 1/2\ 0$ 点付近から $1\ 0\ 0$ 点付近まで伸びている事である。 $1\ 0\ 0$ 点はブラベク拉斯Fの結晶系の場合type-Iの磁気秩序固有の逆格子点である。type-Iの秩序は $J_1 > 0$ かつ $J_2 < 0$ の領域に現れることが分かっているため、spin-glass転移温度 $T_g \cong 17\text{K}$ 直上ではtype-IIIとtype-Iの磁気秩序が競合している事が示唆されている。Mn濃度の高い試料で第1隣接位置にあるMnスピンとの間に強磁性相関が反強磁性相関と競合しながら現れる可能性があるが、Mn化合物全体にもこのような傾向があることからこの系に特異的な現象ではない。この散漫散乱強度を定量的に解析して、短範囲磁気相関係数(オーダーパラメータ)を求めている所である。図5-17は $1\ 1/2\ 0$ 点と $3/2\ 1\ 0$ 点を同時に通る円弧状で測定した10Kから250Kまでの散漫散乱強度の温度変化を示す。散乱強度はほぼBethe近似[31]が可能(散乱強度は規則度 σ の二乗に比例し、 σ は $\tanh(v'/2k_B T)$ の温度依存性を持つ。 v' は結合エネルギー)であり、spin-glass転移とは直接関係がない。図5-18は $1\ 0\ 0$ 点近傍の強度変化であるが、こちらは $1\ 1/2\ 0$ 点近傍の強度と違う温度依存性を持っていることが示唆されている。図5-19は磁場による散漫散乱強度の変化を示している。実験はJRR3M-HRPDを用い、6-Tesla超電導磁石を用いて測定した。図は10Kにおいて2次元的な散乱強度分布を測定した結果である。磁場を散乱面に垂直に加えている。図に現れた通り、磁場を加える事により、散漫散乱強度が $1\ 0\ 0$ 点近傍で増加する。定量的解釈がこの場合も必要であるが、磁場下で、type-Iの磁気秩序が強まることが示唆された。磁場下の $1\ 1/2\ 0$ 点近傍と $1\ 0\ 0$ 点近傍の散漫散乱強度の10Kから100Kまでの温度依存性を測定している。

図5-20にその結果を示す。磁場を加えない場合、散漫散乱強度はBethe近似で比較的良く記述できるのに対して、磁場中の変化は特異的である。特に50~70Kにおける変化が特異的である。このような変化は $1\ 0\ 0$ 点近傍の散乱強度にも現れている。60Kにおける測定値を除外して考えると、散乱強度の温度依存性はBethe近似曲線に近くなるが、磁場零の場合よりも高温まで散乱強度が残る上に、 $1\ 0\ 0$ 点近傍の強度の温度依存性が大きくなっている。

5.4 冷中性子散乱測定

中性子回折測定によって $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系において低温領域にtype-IIIの磁気秩序を有

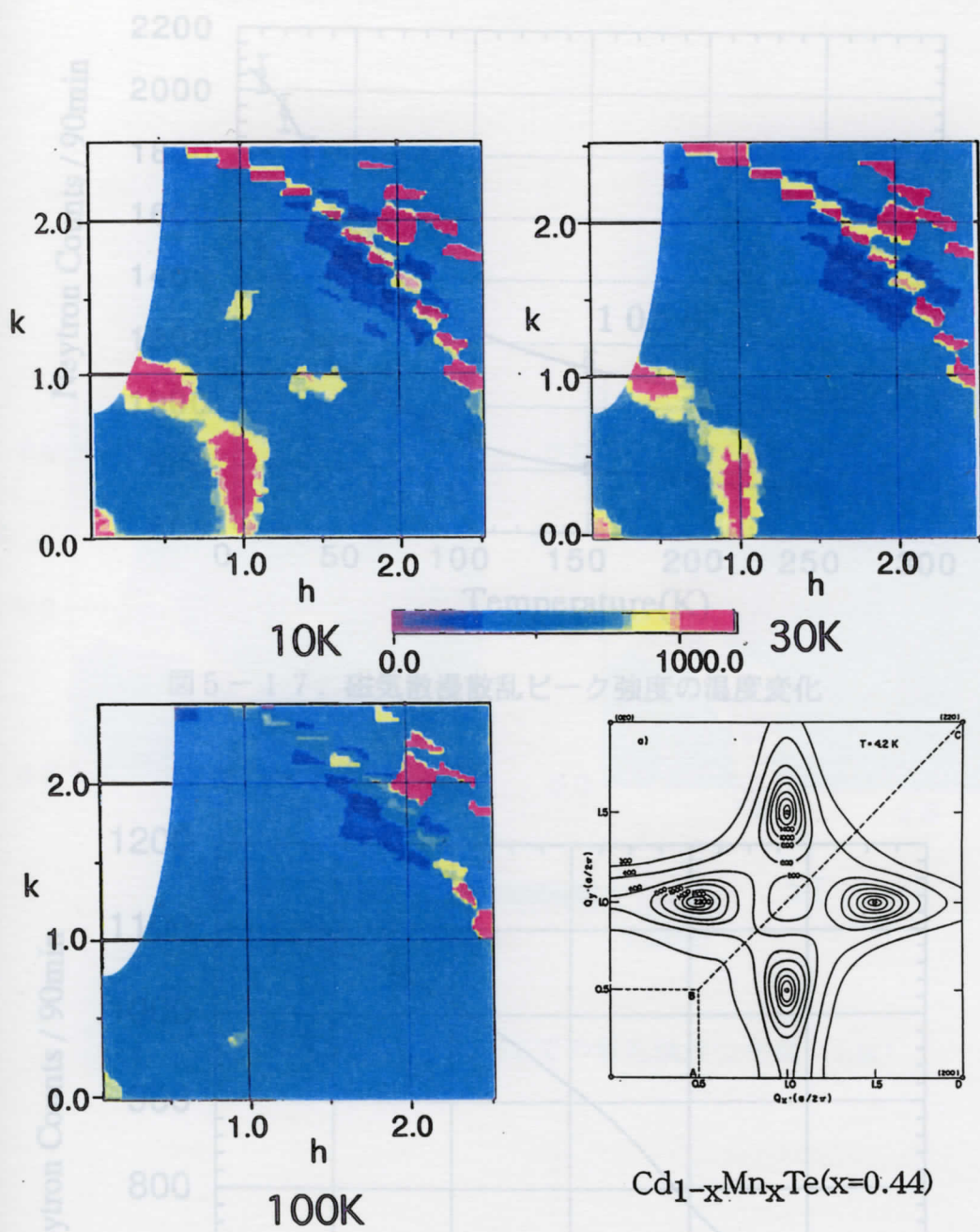


図 5 - 1 6 . 磁気散漫散乱強度分布の温度変化. 右下は $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ $x=0.44$ の文献値.

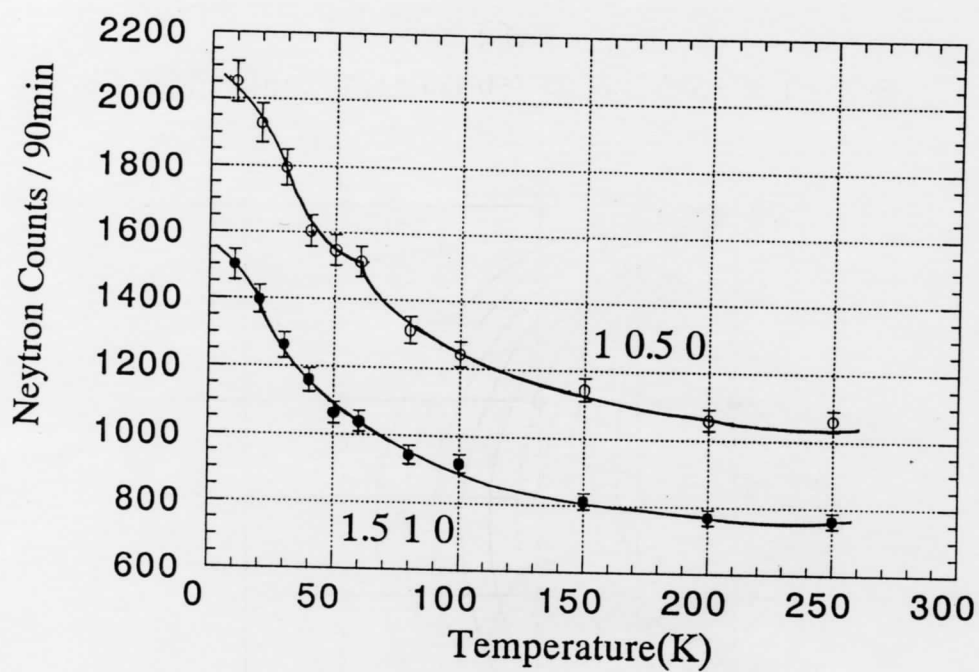


図 5 - 1 7 . 磁気散漫散乱ピーク強度の温度変化

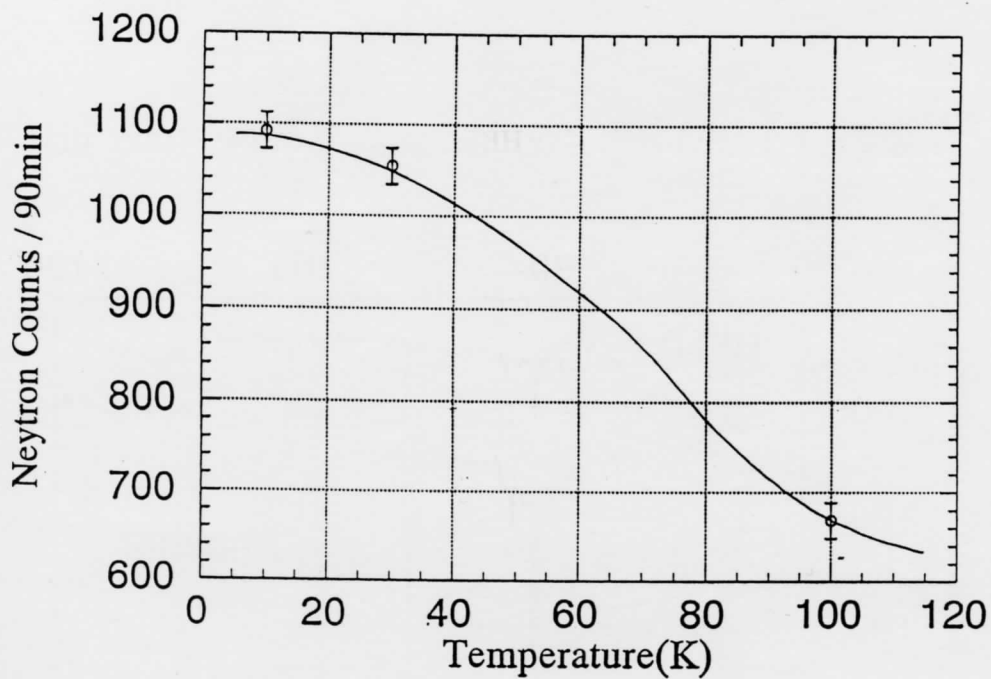


図 5 - 1 8 . 100 ピーク強度の温度変化

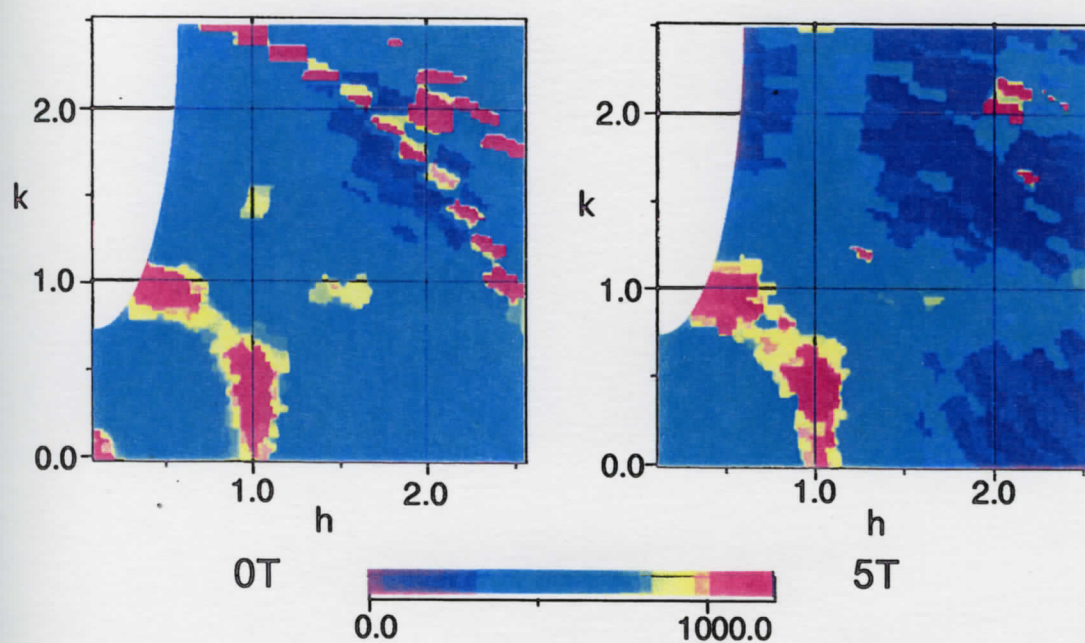


図 5 - 1 9 , $H=0$ 及び $H=5T$ での散乱強度分布図 (10K)

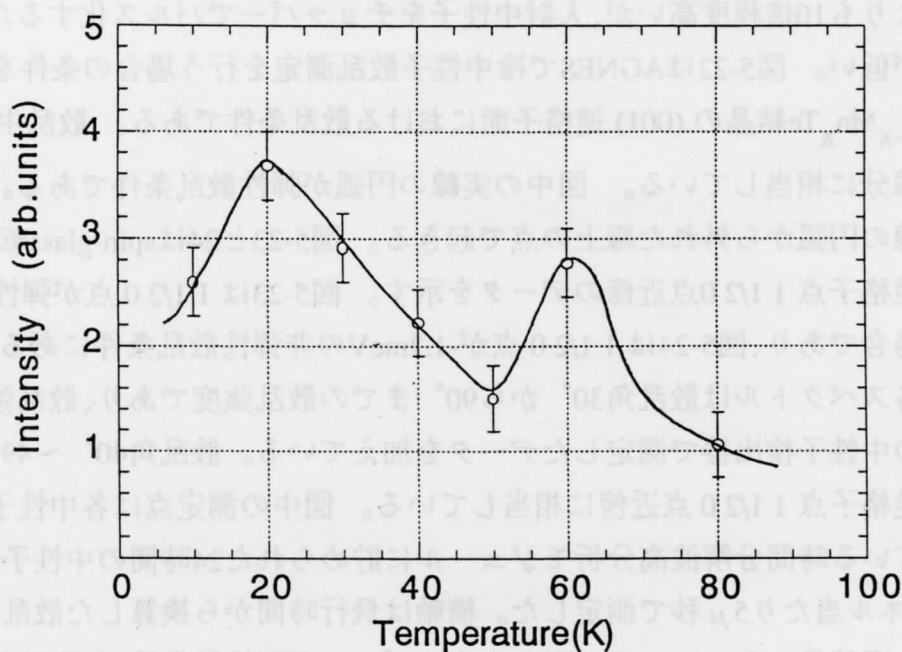
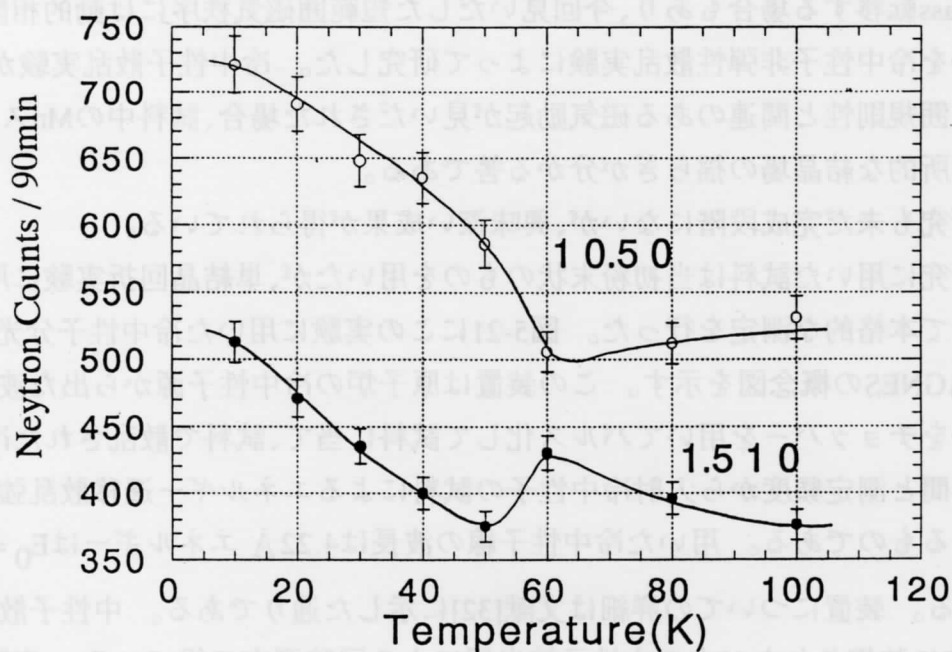


図5-20. 磁場中の磁気散漫散乱強度の温度変化。
上図はW点、下図は100点における変化。

した短範囲規則状態があり、spin-glass温度直上ではtype-Iの磁気秩序も競合関係を持っていることが分かった。spin-glass転移系では、このような短範囲規則性を持たずにspin-glass転移する場合もあり、今回見いだした短範囲磁気秩序には動的相関もあるのか否かを冷中性子非弾性散乱実験によって研究した。冷中性子散乱実験から、上記の短範囲規則性と関連のある磁気励起が見いだされた場合、試料中のMnスピンの寿命や局所的な結晶場の揺らぎが分かる筈である。

この研究も未だ完成段階にないが、興味深い成果が得られている。

この研究に用いた試料は当初粉末状のものをを用いたが、単結晶回折実験に用いた試料を用いて本格的な測定を行った。図5-21にこの実験に用いた冷中性子分光器JRR3M-AGNESの概念図を示す。この装置は原子炉の冷中性子源から出た波長の長い中性子をチョッパーを用いてパルス化して試料に当て、試料で散乱された冷中性子の飛行時間と測定頻度から入射冷中性子の試料によるエネルギー遷移散乱強度を得ようとするものである。用いた冷中性子線の波長は 4.22 \AA エネルギーは $E_0 = 4.56 \text{ meV}$ である。装置についての詳細は文献[32]に示した通りである。中性子散乱強度はAGNESに装備された60本の中性子検出器による同時測定で得ている。実験は10Kから室温までの各温度で行っている。各温度の測定には24時間のデータ集積時間が必要である。AGNESのエネルギー分解能は 0.12 meV であり、熱中性子を用いる3軸型分光器よりも10倍程度高いが、入射中性子をチョッパーでパルス化するため入射中性子強度が低い。図5-22はAGNESで冷中性子散乱測定を行う場合の条件を示している。図は $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 結晶の(001)逆格子面における散乱条件である。散乱中性子が放射状の各線分に相当している。図中の実線の円弧が弾性散乱条件である。非弾性散乱は実線の円弧から外れた線上の点で起きる。図5-23と24はspin-glass転移温度で測定した逆格子点 $1\ 1/2\ 0$ 点近傍のデータを示す。図5-23は $1\ 1/2\ 0$ 点が弾性散乱条件を満たす場合であり、図5-24は $1\ 1/2\ 0$ 点が -1.2 meV の非弾性散乱条件にある場合である。図中の各スペクトルは散乱角 30° から 90° までの散乱強度であり、散乱強度が弱いので10本の中性子検出器で測定したデータを加えている。散乱角 $40^\circ \sim 49^\circ$ のスペクトルが逆格子点 $1\ 1/2\ 0$ 点近傍に相当している。図中の測定点は各中性子検出器に直結されている時間分解波高分析モジュールに貯められた24時間の中性子強度であり、1チャンネル当たり 5μ 秒で測定した。横軸は飛行時間から換算した散乱中性子のエネルギー遷移量になっている。図の中央のピークが弾性散乱線(光学測定におけるRayleigh線に相当)であり、ピークの左側が中性子が試料からエネルギーを得る過程の散乱(Anti-Stokes散乱)、右側が中性子のエネルギーが試料に吸収される散乱(Stokes散乱)に相当している。得られたデータに多少補正を施しているが、示したデータはほ

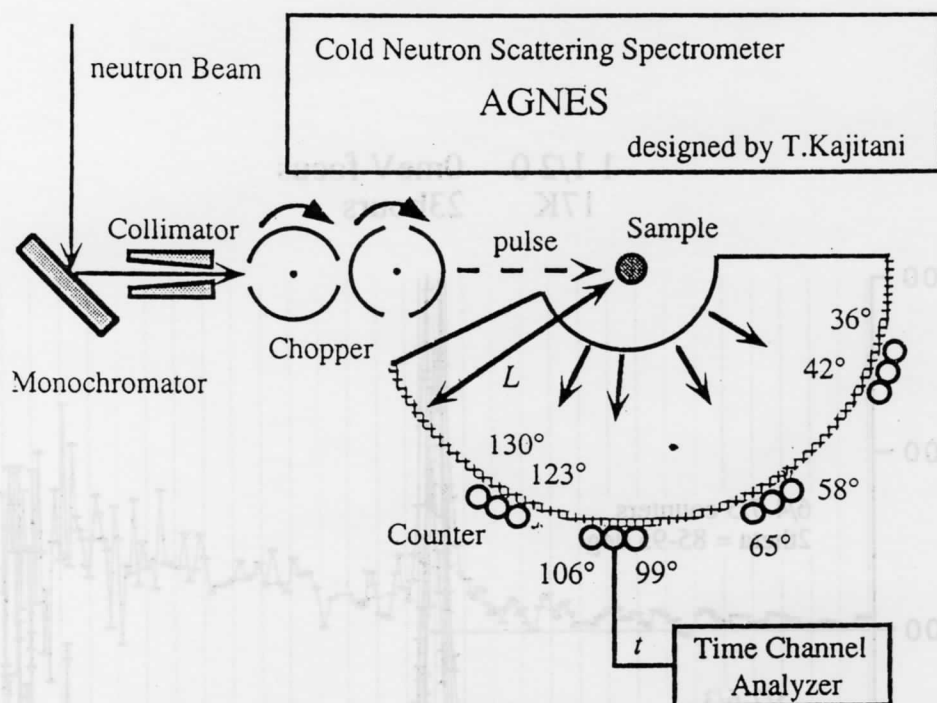


図 5 - 2 1 . JRR3M-AGNES の概念図.

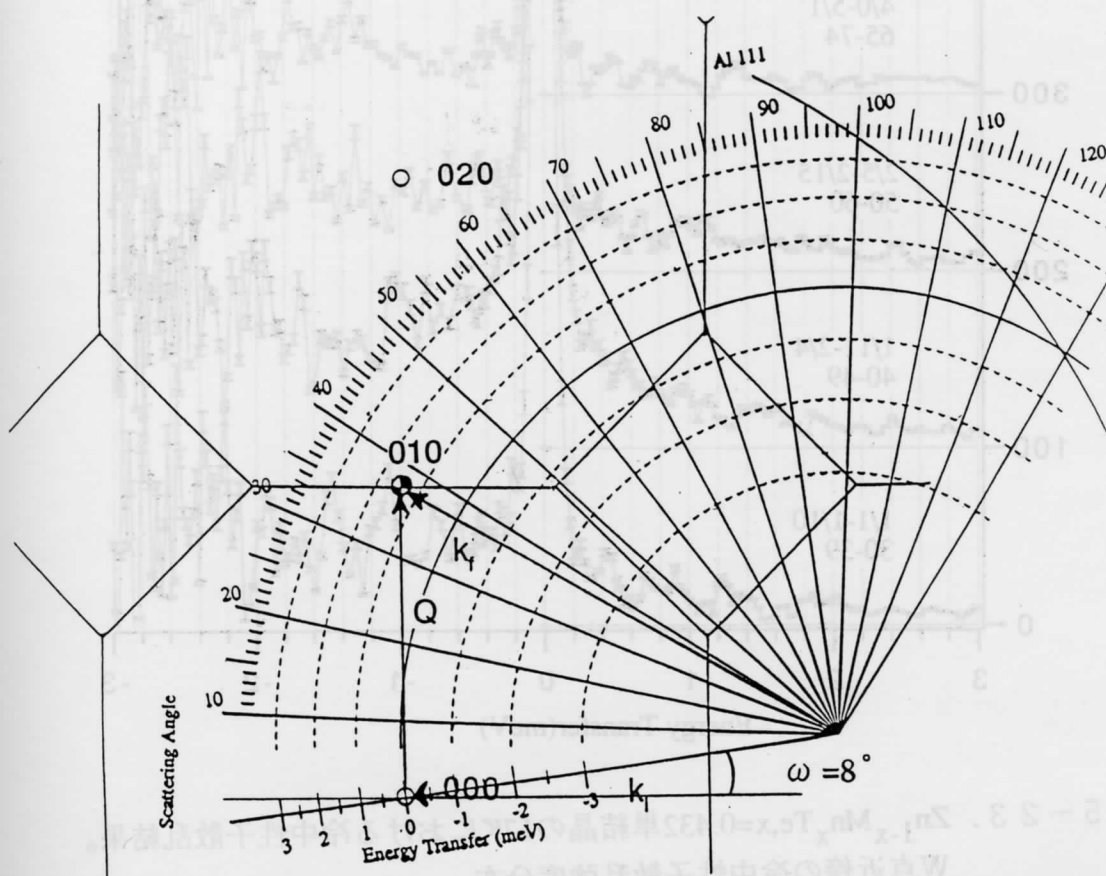


図 5 - 2 2 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.432$ 単結晶の(001)逆格子面と冷中性子散乱測定条件.

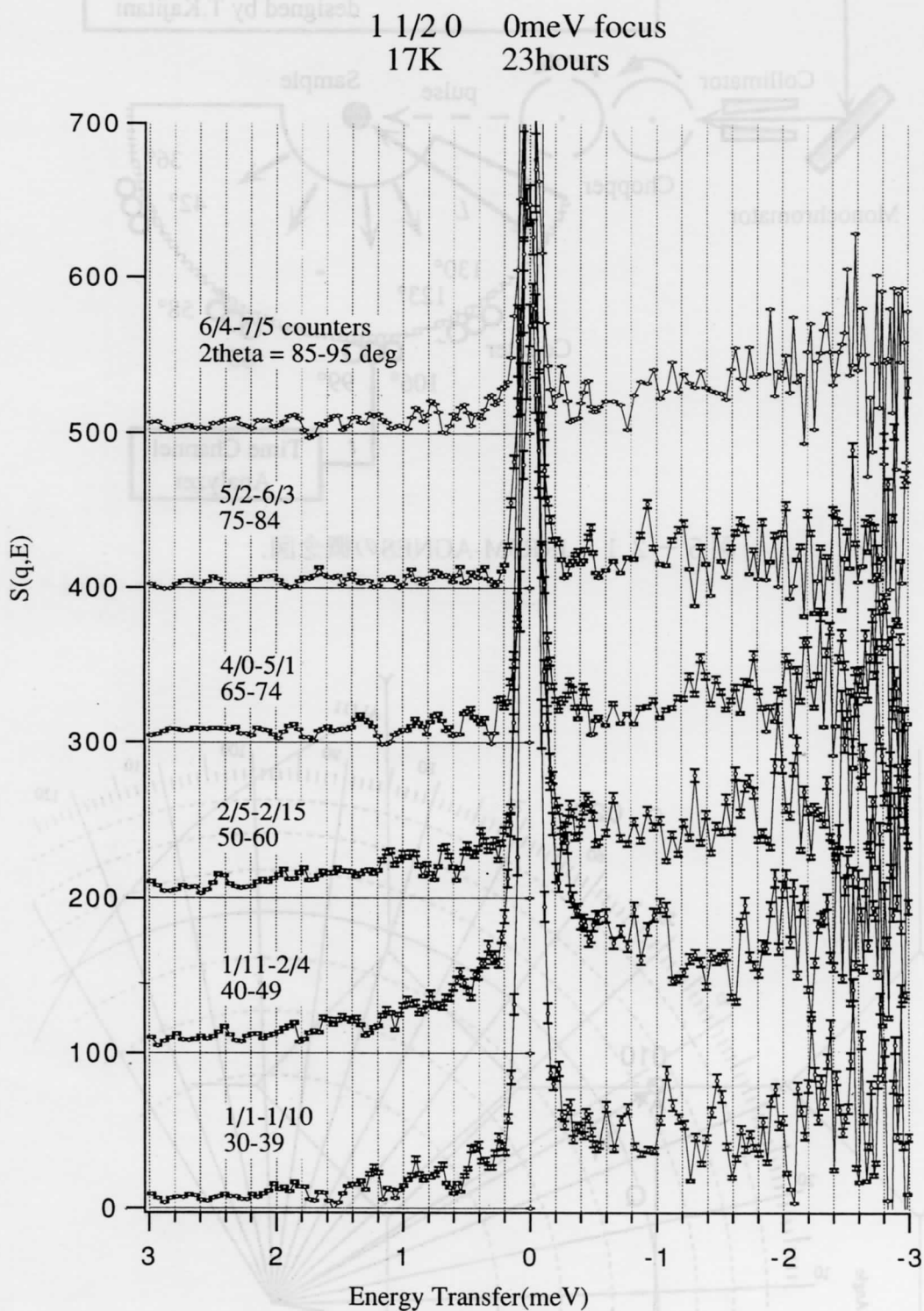


図5-23. $Zn_{1-x}Mn_xTe$, $x=0.432$ 単結晶の17Kにおける冷中性子散乱結果。
W点近傍の冷中性子散乱強度分布。
W点でのエネルギー遷移量を零とする場合。

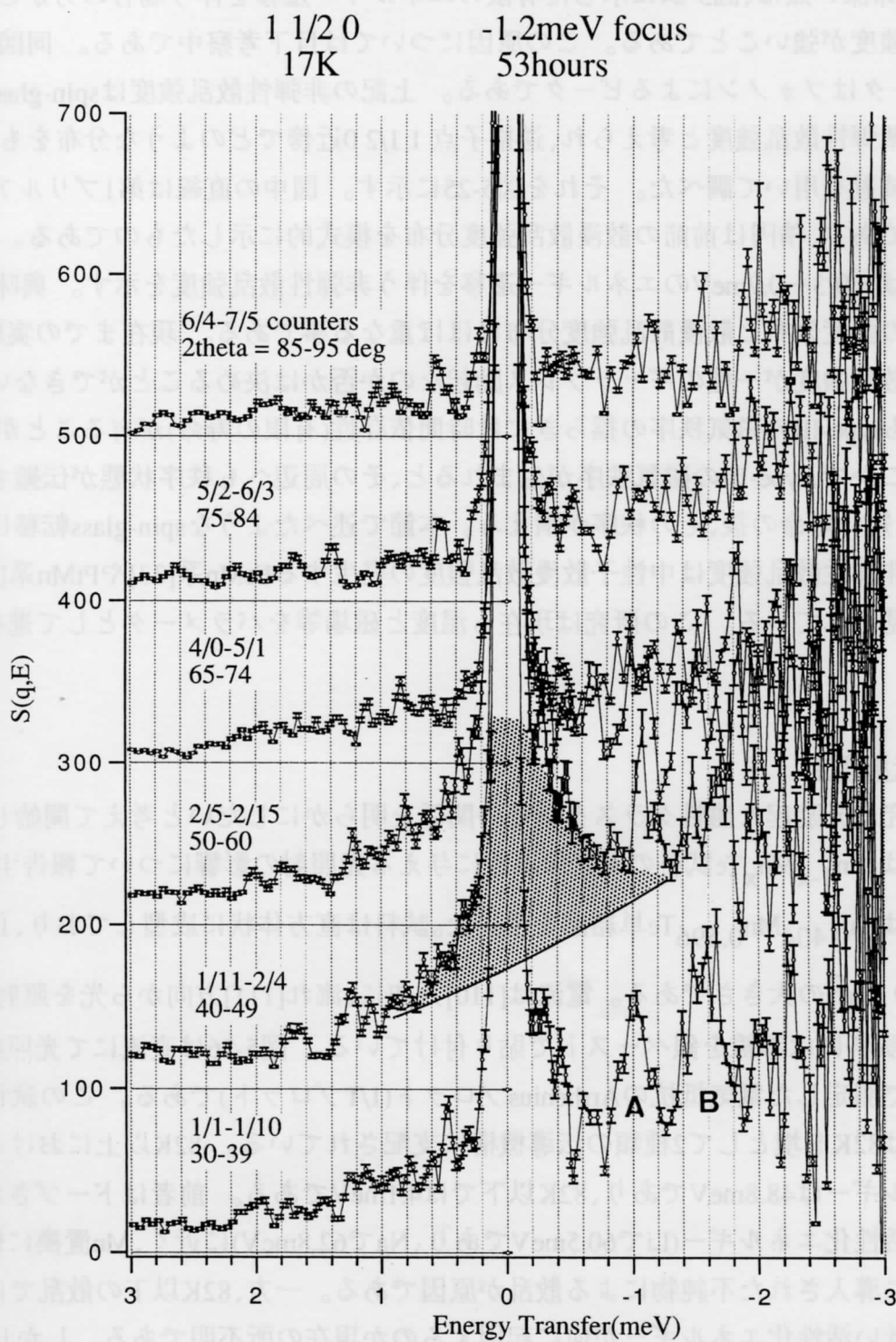


図5-24. $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.432$ 単結晶の冷中性子散乱結果。
W点でのエネルギー遷移量を-1.2meVとする場合.

ば実験で得た通りのものである。逆格子点 $1\ 1/2\ 0$ 近傍には弾性散乱強度に重なる裾の広いローレンツ関数型の非弾性散乱強度(図5-24に示した影の部分)が測定されている。興味深い点は、図5-24に示した有限のエネルギー遷移を伴う場合の方がこの非弾性散乱強度が強いことである。この原因については目下考察中である。同図中AとBのピークはフォノンによるピークである。上記の非弾性散乱強度はspin-glass転移に伴う準弾性散乱強度と考えられ、逆格子点 $1\ 1/2\ 0$ 近傍でどのような分布をもつのかを同じ装置を用いて調べた。それを図5-25に示す。図中の直線は第1ブリルアン帯域境界であり、楕円は前節の散漫散乱強度分布を模式的に示したものである。図中の数字は $\pm 0.3\sim 0.7\text{meV}$ のエネルギー遷移を伴う非弾性散乱強度を示す。興味深い点はこの強度分布と散漫散乱強度分布はほぼ重なる事である。現在までの実験では非弾性散乱強度が一種のギャップレス励起なのか否かは決めることができないが、少なくともtype-IIIの磁気秩序の揺らぎには時間依存性(有限の寿命)が有ることが分かる。一旦どこかで、type-IIIの磁気秩序が生まれると、その周辺へも秩序状態が伝搬する。しかし、短い寿命の後、その秩序が消える。本節で述べたようなspin-glass転移に伴う中性子非弾性散乱強度は中性子散漫散乱強度の発生するFeMn系[33]やPtMn系[34]などでも見られている。この研究は現在も温度と磁場等をパラメータとして進行中である。

5.5 光伝導測定

本研究は光励起と磁性クラスターとの関係を明らかにしたいと考えて開始した。本節では、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料の電気伝導性に与える光照射の影響について報告する。試料には $\text{Zn}_{0.404}\text{Mn}_{0.596}\text{Te}$ 単結晶を用いた。試料は直方体状に成型しており、 $1.9\times 3.8\times 4.9\text{ mm}^3$ の大きさである。電流は $[110]$ 方向に、流れ $[111]$ 方向から光を照射している。試料には導線を銀ペーストで貼り付けている。図5-26は直流にて光照射しない状態で測定した電気抵抗のArrheniusプロット($1/T$ プロット)である。この試料の電気抵抗は82Kを境として2種類の伝導機構に支配されている。82K以上における活性化エネルギーは48.8meVであり、82K以下では4.1meVである。前者はドーピングされた半導体の活性化エネルギー(Liで60.5meVであり、Naで62.8meV)に近く、Mn置換に伴って結晶中に導入された不純物による散乱が原因である。一方、82K以下の散乱ではこのように低い活性化エネルギーが何に起因するのか現在の所不明である。しかし、この領域で、明瞭なpersistent photoconductivity(PPC)が観測されたことから、その原因となるDXセンター(格子欠陥の一種)の存在が鍵であると考えている。

この試料にArガスレーザーとHe-Neガスレーザーを用いて4885 Å、5145 Åおよび6328

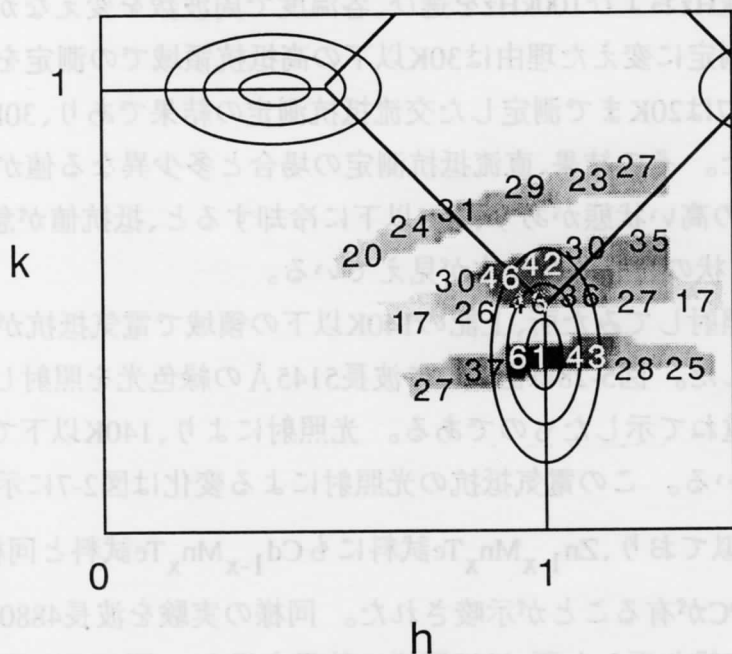


図 5 - 2 5 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}, x=0.432$ 単結晶の 17K における冷中性子散乱強度分布.
弾性散漫散乱強度分布と非弾性散漫散乱強度分布がほぼ重なる.

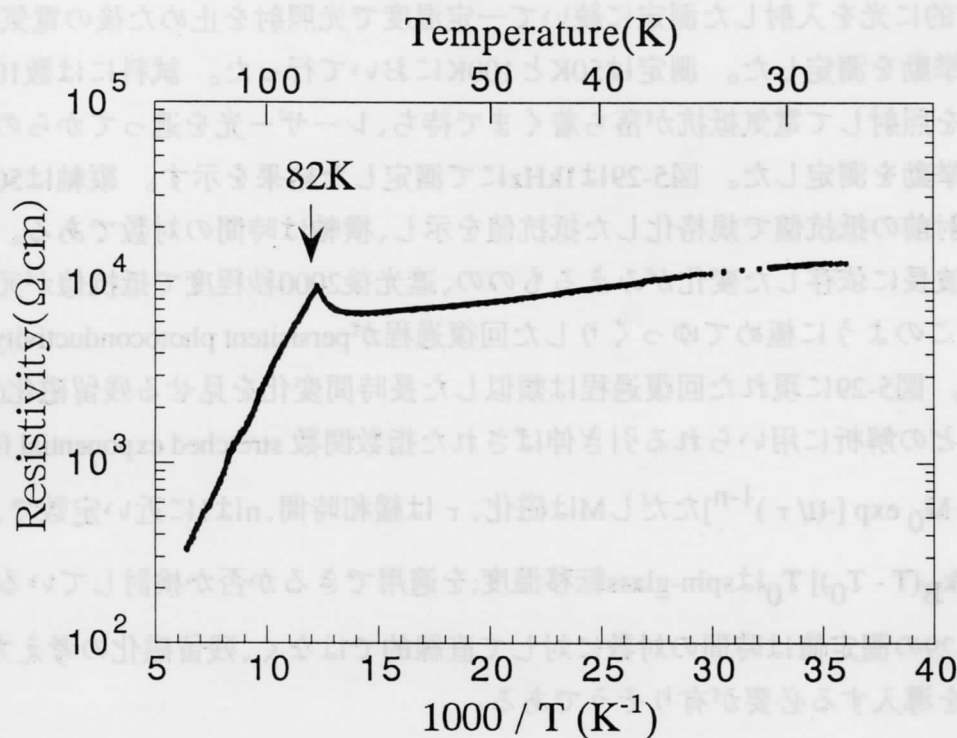


図 5 - 2 6 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}, x=0.569$ における直流抵抗率の Arrhenius-plot.

Åの光を入射して電気抵抗を測定した。この測定には交流4端子法を用いた。交流として120Hz, 1kHz, 10kHzおよび100kHzを選び、各温度で周波数を変えながら測定した。直流測定から交流測定に変えた理由は30K以下の高抵抗領域での測定を可能とするためである。図5-27は20Kまで測定した交流抵抗測定の結果であり、30K以下の抵抗も測定が実施できた。その結果、直流抵抗測定の場合と多少異なる値が得られた。140K付近に抵抗値の高い状態があり、30K以下に冷却すると、抵抗値が急に増加する。また25K近傍には肩状の特異的な変化が見えている。

この試料に光を照射してみた所、上記の140K以下の領域で電気抵抗が著しく減少することを見いだした。図5-28は図5-27に波長5145 Åの緑色光を照射した場合の電気抵抗温度曲線を重ねて示したものである。光照射により、140K以下では電気抵抗が1/5程度になっている。この電気抵抗の光照射による変化は図2-7に示した Cd_{1-x}

Mn_xTe 試料と良く似ており、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料にも $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料と同様にpersistent photoconductivity; PPCが有ることが示唆された。同様の実験を波長4880 Åと6328 Åのレーザー光を用いて繰り返した所、ほぼ同様の結果を得た。図5-28に示した例ではPPC quenching 温度は160K付近にあるが、6328 Åの光の場合は約140Kである。この系ではPPC quenching 温度に入射光の波長依存性の有る可能性があるが、入射光の強度に対する依存性である可能性もある。

定常的に光を入射した測定に続いて一定温度で光照射を止めた後の電気抵抗の時間変化挙動を測定した。測定は50Kと100Kにおいて行った。試料には数10分間レーザー光を照射して電気抵抗が落ち着くまで待ち、レーザー光を遮ってからの電気抵抗の回復挙動を測定した。図5-29は1kHzにて測定した結果を示す。縦軸は50Kにおける光照射前の抵抗値で規格化した抵抗値を示し、横軸は時間の対数である。照射した光の波長に依存した変化がみえるものの、遮光後2000秒程度で抵抗値が元に戻っている。このように極めてゆっくりした回復過程がpersistent photoconductivityの特徴である。図5-29に現れた回復過程は類似した長時間変化を見せる残留磁化(TRMやIRM)などの解析に用いられる引き伸ばされた指数関数 stretched exponential function ; $M_R(t) = M_0 \exp [-(t/\tau)^{1-n}]$ ただしMは磁化、 τ は緩和時間、nは1に近い定数で、 $\tau = \tau_0 \exp [E_C/k_B(T - T_0)]$ T_0 はspin-glass転移温度;を適用できるか否か検討している。しかし、図5-29の測定値は時間の対数に対して直線的ではなく、残留磁化の考え方とは違う関数を導入する必要がありそうである。

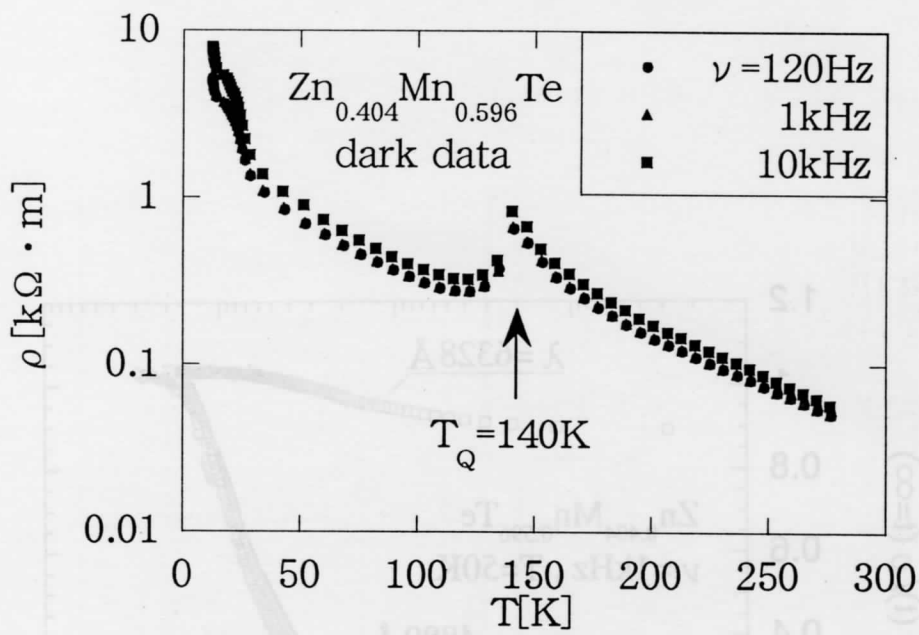


図 5 - 2 7 . $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.569$ における交流抵抗率の温度変化.

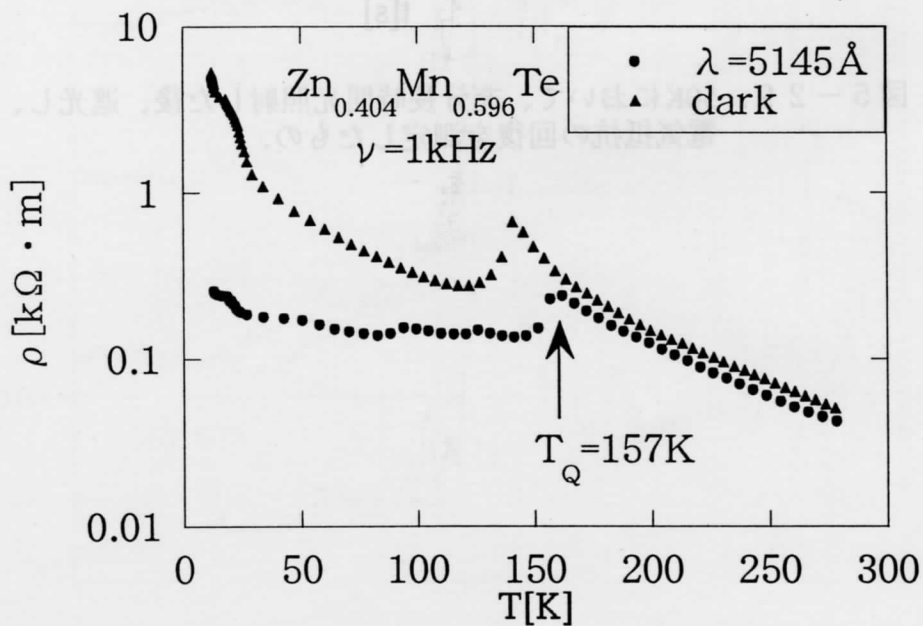


図 5 - 2 8 . 光照射した $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, $x=0.569$ の交流抵抗率と光照射無しの場合の比較.

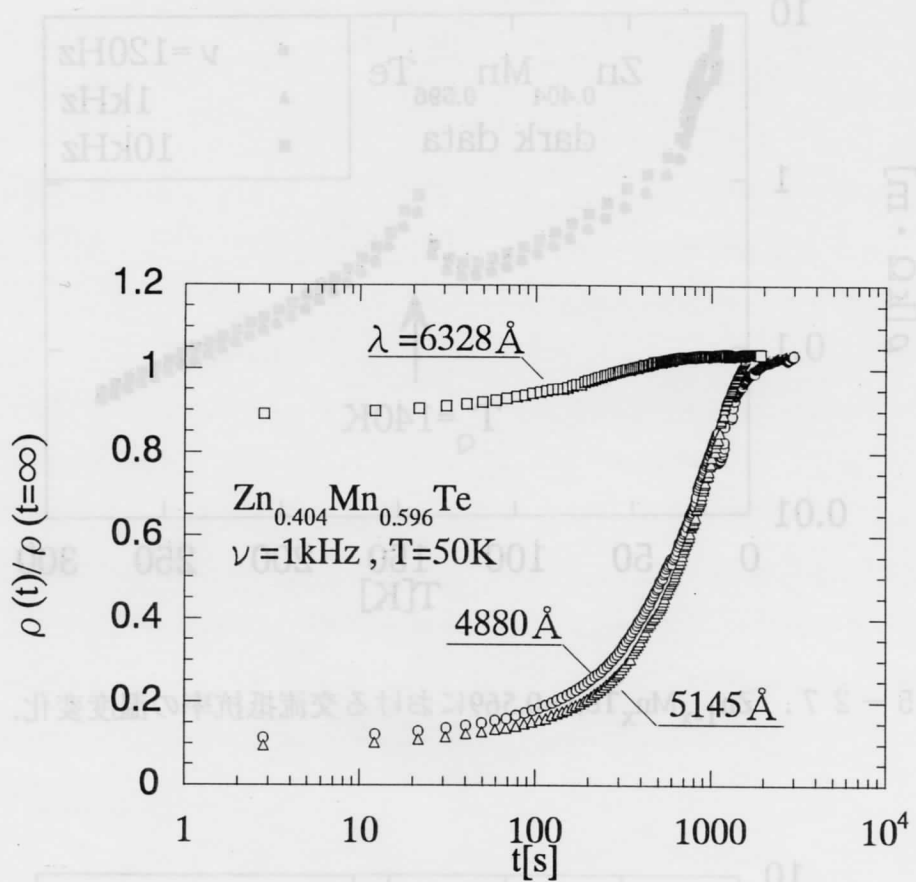


図 5 - 2 9 . 50Kにおいて、充分長時間光照射した後、遮光し、電気抵抗の回復を測定したもの。

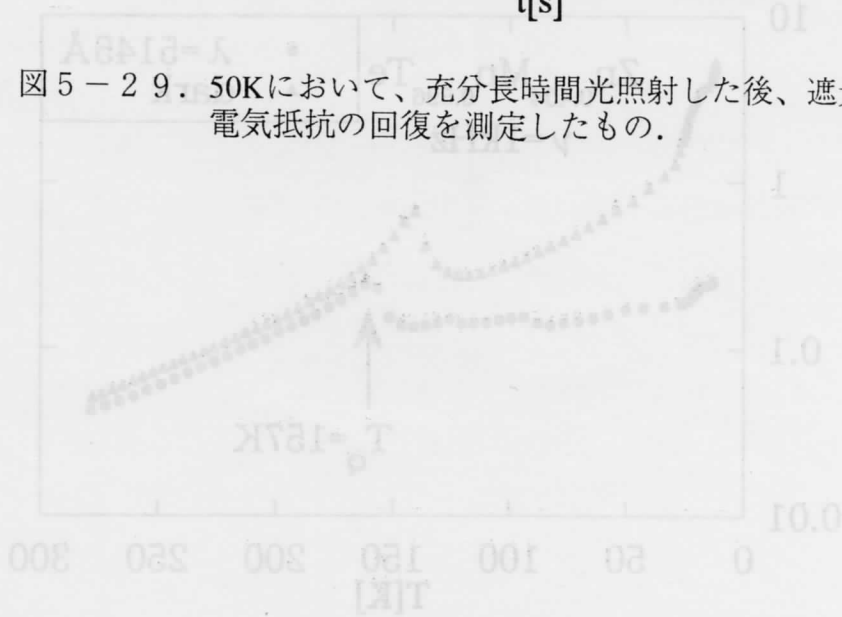


図 5 - 2 8 . 光照射した $\text{Zn}_{0.404}\text{Mn}_{0.596}\text{Te}$ の電気抵抗率と温度との関係の比較

5.6 Brillouin散乱測定

本研究では光励起された磁気ポーラロン等に興味があるため、冷中性子散乱実験に対応した低エネルギー分光測定を計画した。本研究グループは在来の3パス式ファブリー=ペロー分光器を所有していたので、これを改善して磁気励起の測定を可能にしようとした。

図5-30は5パス式に改善したファブリー=ペロー分光器の内部を示す。今回の補助金によって、エタロン板を研磨し直し、コーナキューブプリズムを調整し直して光路を5パス式にした。また分光器内の温度が $\pm 0.1\text{K}$ の範囲で一定になるように温度調節も行うようにした。図5-31は光の強度を測定する光電子増倍管の断面図であるが、液体窒素で冷却したHe gasを循環させて冷却して熱雑音を減少させた。試料は磁場中に置き、さらに低温まで冷却する必要があるため、He gas循環式冷凍機を用い、C型電磁石の中央に挿入できる細いクライオスタットを作成した。Brillouin散乱測定は 180° 散乱配置で実施している。試料表面のRayleigh反射光を取り除くため試料は 45° に傾けてある。図5-32は新しく組み立てたBrillouin散乱測定装置の概略図である。

Brillouin装置は入射光のエネルギーが 2.5eV 程度であるにも拘わらず、エネルギー分解能が 0.03meV 以下であり、入射光のエネルギーの 10^{-5} 倍もの精度を持つため分光器の機械的安定性が重要である。これを調節して実際の測定に用いるためには測定用台の防振、温度コントロール、光軸合わせ等に細心の注意が必要である。本測定はフォノン等の測定よりも高いエネルギー領域にあるマグノン測定するため、測定強度のS/N比向上の工夫が必要である。一つの工夫がRayleigh光の減光である。これには機械的シャッターを取り付ける、弾性散乱条件の時に、光を測定系になるべく入れないようにシャッターを取り付けることで、ある程度可能になる。図5-32のP1スリット脇のシャッターがその役割を持つ。

用いた試料は $\text{Fe}_{1.6}\text{Mn}_{1.4}\text{Si}$ 単結晶である。5.2節に述べたように、この試料には 151K のCurie点と 68K の磁気転移温度がある。強磁性相では $[111]$ 軸に垂直な平面に磁化容易方向があるが、低温層では、 $[111]$ 軸方向に反磁性相関が現れる。新しく組み立てたBrillouin散乱装置を用いて強磁性マグノンのにおけるエネルギーギャップを実測しようとした。

光学測定に先立って、冷中性子散乱測定によって、このエネルギーギャップを決定しておくことにした。図5-33は5.4節に述べた冷中性子分光器JRR3M-AGNESを用いて測定したマグノンの冷中性子散乱強度測定結果(上図)と決定された分散関係である(下図の黒点)。白抜き丸は三木[30]が3軸型中性子分光器で決定した点であり、本研究により本試料のエネルギーギャップは 0.2meV と決定した。

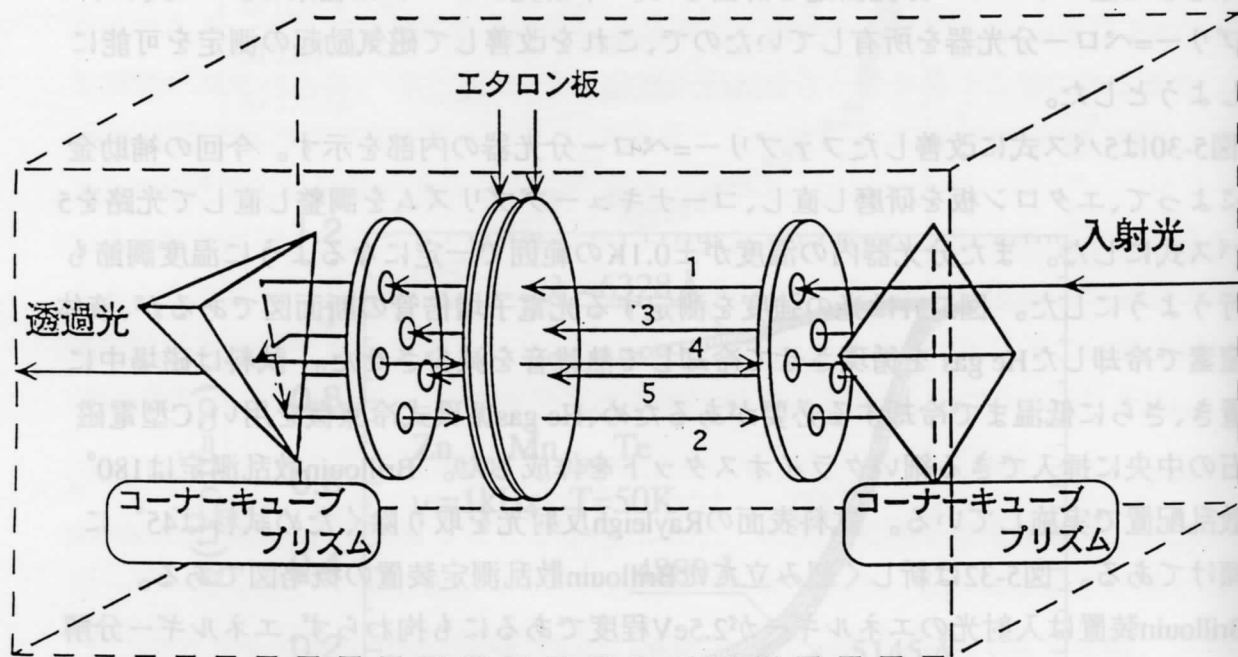


図5-3 0.5パスファブリ・ペロー干渉分光器

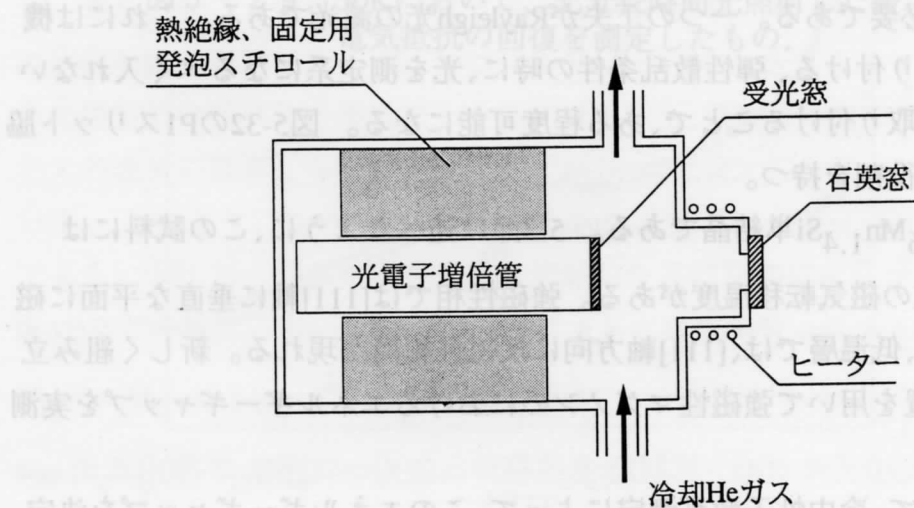


図5-3 1. 光電子増倍管の冷却

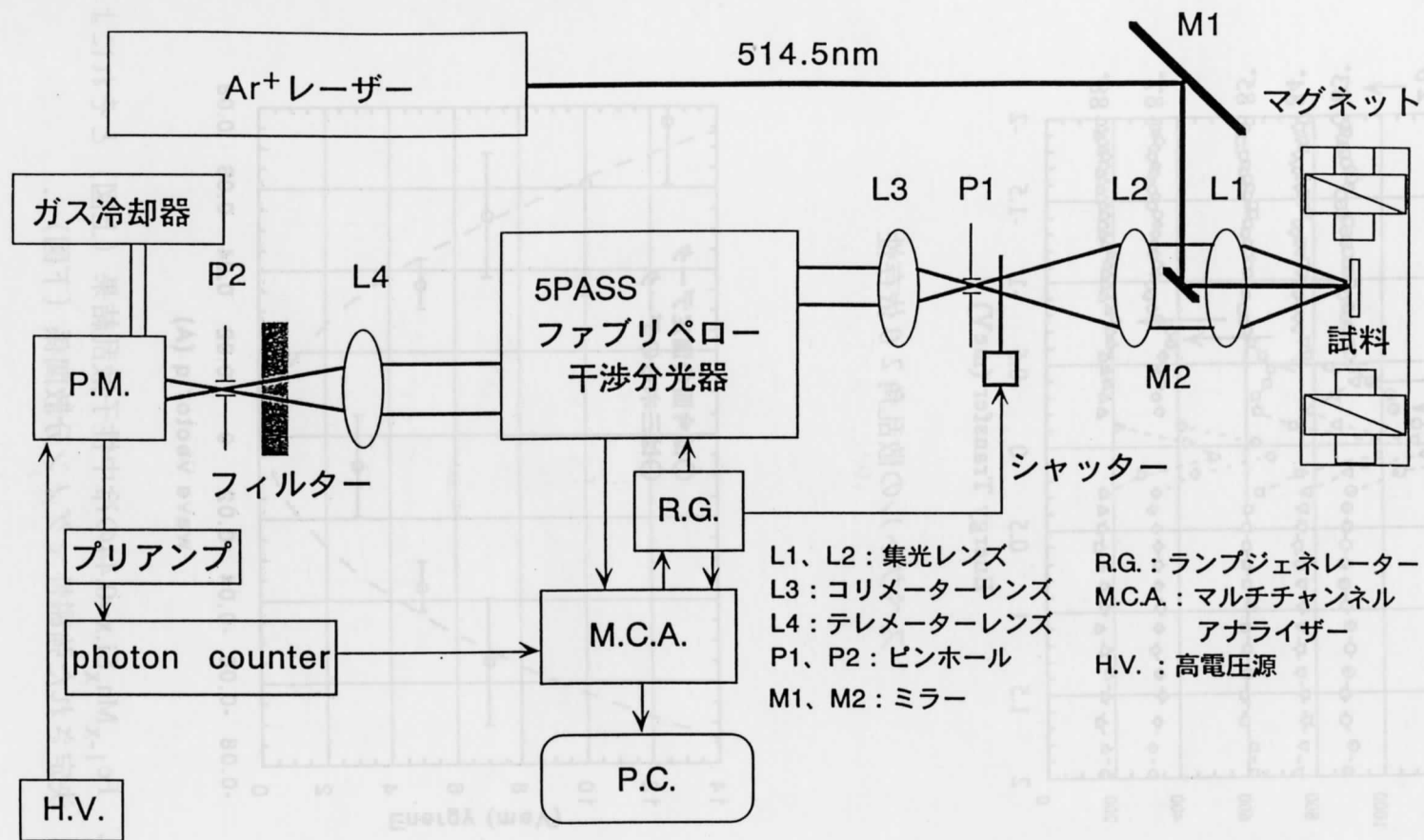
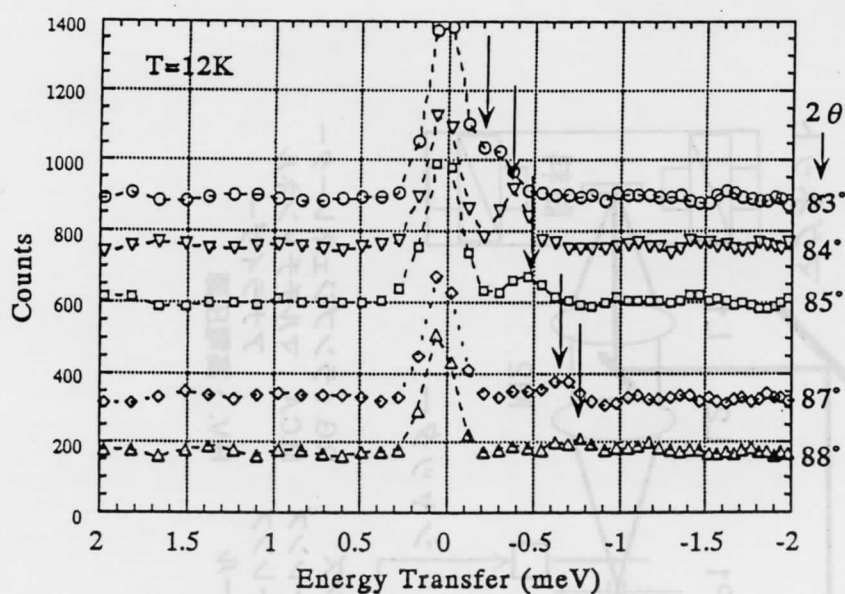


図 5 - 3 2 . 本補助金で改善した 5 パス式 Brillouin 散乱測定装置の概念図.



スペクトルの散乱角 2θ 依存性

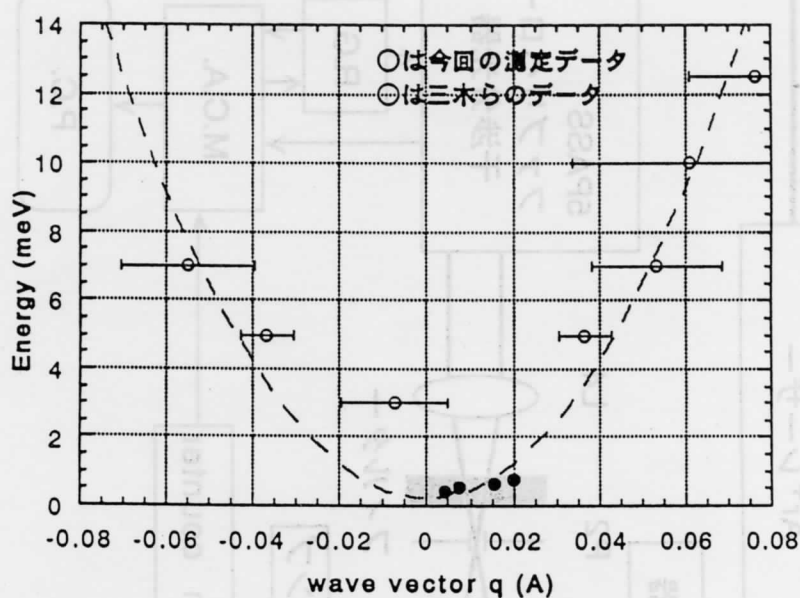


図 5 - 3 3. $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}$, $x=0.44$ の冷中性子散乱結果 (上図) とそれによって決定された強磁性マグノン分散関係 (下図) .

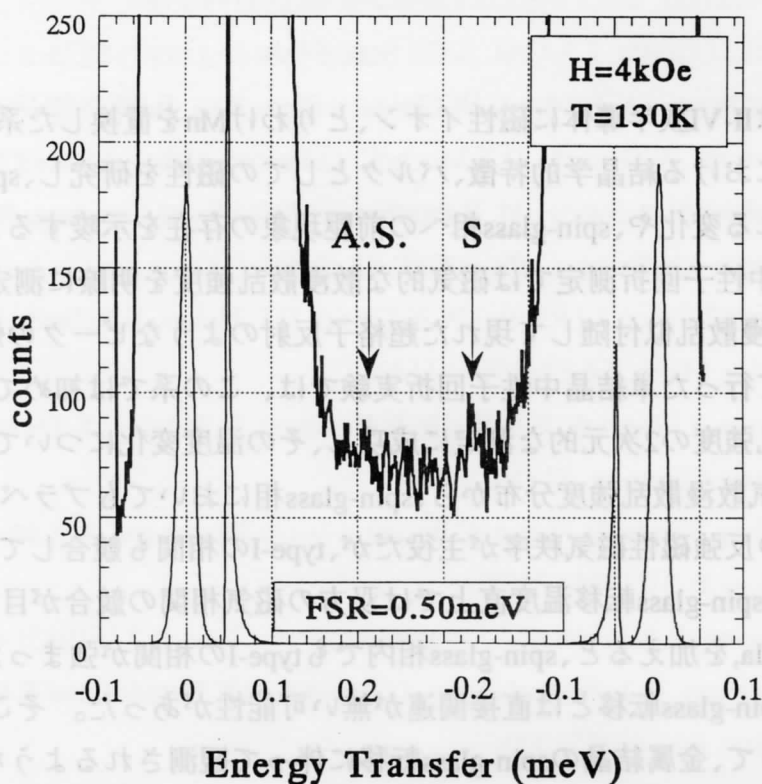


図 5 - 3 4 . $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}, x=0.44$ の 130K における Brillouin 散乱強度分布.

図5-34にBrillouin散乱によって、測定したマグノンピークを示す。測定は強磁性領域の130Kにて行った。図中の記号ASとSはそれぞれ右左の弾性散乱線から非弾性散乱過程によってシフトしたピークであり、エネルギー遷移量、 $\Delta E = \pm 0.22 \text{ meV}$ から Γ 点のバルクマグノンに相当していることが分かった。

6. 結論

本研究はII-VI族半導体に磁性イオン、とりわけMnを置換した系に着目して、室温以下の領域における結晶学的特徴、バルクとしての磁性を研究し、spin-glass転移に関する見られる変化や、spin-glass相への前駆現象の存在を示唆するような現象を捕らえた。粉末中性子回折測定では磁気的な散漫散乱強度を明瞭に測定することもできた。しかし、散漫散乱似付随して現れた超格子反射のようなピークの帰属はできなかった。引き続いて行った単結晶中性子回折実験では、この系では初めて $1\frac{1}{2}0$ 点近傍の磁気散漫散乱強度の2次元的な測定に成功し、その温度変化についても興味ある知見を得た。磁気散漫散乱強度分布から、spin-glass相においてもブラベクルラスFの結晶格子のtype-IIIの反強磁性磁気秩序が主役だが、type-Iの相関も競合していることが分かった。特に、spin-glass転移温度直上では双方の磁気相関の競合が目立っている。強い磁場、5-Teslaを加えると、spin-glass相内でもtype-Iの相関が強まった。これらの短範囲規則度とspin-glass転移とは直接関連が無い可能性があった。そこで、冷中性子散乱測定によって、金属結晶のspin-glass転移に伴って観測されるような、低エネルギー磁気励起がこの系にもあるか否かを確認しようとした。実験の結果、spin-glass転移温度近傍の温度において、type-IIIの静的な磁気相関の見いだされた逆格子点を中心とする波数領域に1meV以下のエネルギーに広がる準弾性散乱もまた広がっていることが分かった。これは、この系における静的スピン相関と動적スピン相関には連続性があることを示しており、金属系のspin-glass系と事情が多少異なる。

$\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 試料の光伝導について、本研究によって新しい知見が得られた。室温から20Kまでの範囲で交流4端子法によって電気抵抗測定を行い、著しい光電効果が発見された。すなわち、Mn濃度 $x=0.56$ の試料では150K以下では波長6328 Å から4885 Å のレーザー光を照射することによって電気抵抗が最も変化の大きい場合、約1/100となった。この現象は光照射を停止した後にも2000秒程度続き、100K以下の領域ではこの寿命に大きな温度依存性が無かった。このような長寿命の光電効果は永続性光電効果、persistent photoconductivity と呼ばれる現象であり、光メモリー等への応用が期待されている。このような現象が $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系のような $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系よりもは

るかにエネルギーギャップの開いている系でも発見された意義は大きい。

本研究補助金によって、光物性測定を開始できたが、在来のBrillouin散乱装置を大幅に改良してマグノンを測定できるようにした。今後、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 系において、冷中性子散乱強度に対応した準弾性光散乱強度の発見に努め、さらにその強度の温度変化等を測定する計画である。

[1] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[2] J. K. Furdyna, W. Giriat, D. F. Mitchell, G. Sporn, Solid State Comm. 61 (1986) 1149.

[3] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[4] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[5] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[6] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[7] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[8] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[9] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[10] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[11] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[12] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[13] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[14] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[15] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[16] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[17] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[18] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[19] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[20] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[21] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[22] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[23] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[24] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

[25] J. A. Gajda, J. Ginter, J. A. Gajda, Solid State Phys. 42 (1987) 607.

7. 参考文献

- [1] M.Jain: "Diluted Magnetic Semiconductors", World Scientific Publishing Co.,London 1991,p.13.
- [2] J.A.Gaji, R.R.Galazka, M.Nawrocki : Solid State Commun. 25 (1987) 193.
- [3] J.A.Gaji, P.Byszewski, M.Z.Oieplak, G.Fishman, A.Twarowski; Proc.XIV Int. Conf. Phys.Semicond. Inst.Phys.Conf. Ser.No.43 (1979) 1113.
- [4] A.Golnik, J.Ginter, J.A.Gaji: Solid State Phys. 16 (1983) 6073.
- [5] S.P.McAlister, J.K.Furdyna, W.Giriant : Phys. Rev. B 29 (1984) 1310.
- [6] J.K.Furdyna, W.Giriant , D.F.Mitchell, G.Sproule :J.Solid State Chem. 46 (1983) 349.
- [7] A.Twardowski, p.Swidorski, R.Pauthenet : Solid State Commun. 50 (1984) 509.
- [8] N.Samarth, J.K.Fudyna : Proc.IEEE 78 (1990) 990.
- [9] T.M.Giebultowicz,J.J.Rhyne, W.Y.Ching, D.L.Huber, B.Lebech, R.Galazka : J.Mag.Mag.Mater. 54-57 (1986) 1149.
- [10] D.Heiman, J.Warrock, P.A.Walft, R.Kershaw, D.Ridgley, K.Dwight and A.Wold : Solid State Commun. 52 (1984) 909.
- [11] Tran Hong Nhung, R.Planel, C.Benoit-a-la-Guillaume and A.K.Bhattachrjee :Phys.Rev.B 31(1985) 2388.
- [12] D.Heinamn, P.A.Wolft and J.Warnocki : Phys. Rev. B 27 (1983) 4848.
- [13] D.L.Peterson, D.V.Bartholomew, U.Debska, A.K.Ramdas and S.Rodriguez: Phys. Rev. B32 (1985) 323.
- [14] J.J.Zayhowski , R.N.Kershaw, D.Ridgley, k.Dwight, A.Wold, R.R.Galazka and W.Giriant : Phys. Rev. B35 (1987) 6950.
- [15] D.D.Awschalom and J.Warmock : IEEE J.Quantum Electr. 25 (1989) 2570.
- [16] H.Krenn, W.Zawadzki and G.Bauer: Phys. Rev. Letters 55 (1985) 1510.
- [17] P.Granberg, P.Svedlin,dh. P.Nordblad, L.Lundgren and H.S.Chen: Phys.Rev.B 35(1987) 2075.
- [18] M.Ayadi, J.Ferre, A.Mauger and R.Triboulet: Phys. Rev.Letters 57 (1986) 1165.
- [19] R.V.Chamerlin : Phys.Rev.B30 (1984) 5393.
- [20] E.Kierzek-Pecold, W.Szymanska and J.Ginter : J.Mag.Mag.Mater. 50 (1985) 243.
- [21] C.Leighton, I.Terry and P.Becla : Phys. Rev.B 56 (1997) 6689.
- [22] D.J.Chadi and K.J.Chang : Phys. Rev. B 39(1989) 10063.
- [23] P.M.Mooney : J.Appl. Phys. 67 (1990) R1.
- [24] B.C.Burkey, R.P.Khosla , J.R.Fishcer and D.L.Losee : J.Appl. Phys. 47 (1976) 1095.
- [25] J.W.Bennett, Tineke Thio, S.E.Kabakoff, D.J.Chadi and R.A.Linke :

- J.Appl.Phys. 78(1995) 5827.
- [26] P.M.Mooney, N.S.Caswell and S.L.Wright : J. Appl.Phys. 62 (1987) 4786.
- [27] 泉 富士男：日本結晶学会誌 27(1985) 23.
- [28] 森井幸生：日本結晶学会誌 34(1992) 62.
- [29] S.Romiyoshi and H.Watanabe : J.Phys. Scoc. Japan 39 (1975) 295.
- [30] 三木寛之：東北大学理学研究科博士論文（平成八年度）
- [31] H.A.Bethe : Proc.Roy.Soc. 150A (1935) 552.
- [32] T.Kajitani, K.Shibata, S.Ikeda, m.Kohgi, H.Yoshizawa, K.Nemoto and K.Suzuki:
Physica B 213 & 214 (1995) 872.
- [33] G.Aeppli, S.M.Shapiro, B.J.Birgeneau and H.S.Chen: Phys. Rev.B29(1984) 2589.
- [34] Y.Tsunoda, N.Hiruma , J.L.Robertson and J.W.Cable ; Phys.Rev.B 56 (1997) 11051.

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録しておりません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。